

УДК 621.039.531

ИЗМЕНЕНИЯ ЭЛЕКТРОСОПРОТИВЛЕНИЯ И НАМАГНИЧЕННОСТИ НЕОБЛУЧЕННОЙ И ОБЛУЧЕННОЙ НЕЙТРОНАМИ СТАЛИ X18H9 В ПРОЦЕССАХ ДЕФОРМАЦИИ И ОТЖИГОВ

^{1,2)}Максимкин О.П., ¹⁾Нұрғали Е.Е.

¹⁾Институт ядерной физики, Алматы, Казахстан

²⁾НИЯУ МИФИ, Москва, Россия

Приведены и обсуждаются результаты экспериментов по изучению деформационного и термического изменений электромагнитных свойств аустенитной стали X18H9, подвергнутой нейтронному облучению в ядерном реакторе ВВР-К. Особенное внимание уделено прямому и обратному фазовому мартенситному превращению. Обнаружен эффект дополнительного прироста количества ферромагнитной α -фазы при отжиге ($\sim 450^\circ\text{C}$) облученной, деформированной при отрицательных температурах (-20 и -60°C) реакторной стали.

ВВЕДЕНИЕ

С развитием ядерной энергетики все более актуальным становится вопрос о масштабах деградации структуры и свойств материалов, используемых в ответственных элементах деталей энергетических установок, от которых напрямую зависит их срок эксплуатации.

В настоящее время в качестве конструкционных материалов для быстрых ядерных реакторов широко применяются коррозионностойкие стали аустенитного класса, которые в процессе их эксплуатации в ядерно-энергетических установках подвергаются нейтронному облучению, а также воздействию больших градиентов температур, внешних и внутренних напряжений. В результате работы в экстремальных условиях в кристаллической решетке накапливаются дефекты, что приводит к значительным изменениям микроструктуры и проявлению таких эффектов как радиационные ползучесть и распухание, уменьшение пластичности и повышение температуры хрупко-вязкого перехода, понижение сопротивления общей и язвенной коррозии, которые негативно сказываются на физико-механических свойствах. Все эти факторы необходимо учитывать при расчете времени эксплуатации внутриреакторной конструкции и служебных характеристик тепловыделяющих сборок (ТВС).

Одним из важнейших обстоятельств, который необходимо иметь ввиду при выборе реакторных материалов, является то, что аустенитные стали (γ -фаза, ГЦК-решетка), как правило, метастабильны и под интенсивным внешним воздействием (деформация, облучение) они претерпевают фазовое превращение с образованием ферритной (мартенситной) α -фазы (ОЦК-решетка). Для изучения особенностей процессов фазово-структурных изменений проведены многочисленные комплексные исследования влияния химического состава, температуры скорости и способов деформации, вида и флюенса облучения на количество и интенсивность накопления α -фазы [1], а также ее поведения в процессе деформации и отжигов [2, 3]. Тем не менее, до сих пор нет общепринятых представлений о закономерностях

изменений таких физических величин как электросопротивление и намагниченность облученных аустенитных сталей в процессах деформации и постдеформационных отжигов.

Цель настоящей работы: Изучить влияние нейтронного облучения и пластической деформации при низких температурах на фазовые $\gamma \leftrightarrow \alpha$ превращения, выявить закономерности изменения количества мартенситной α -фазы и величины электросопротивления в процессе постдеформационных отжигов аустенитной коррозионно-стойкой стали.

ИССЛЕДУЕМЫЙ МАТЕРИАЛ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Для проведения экспериментов использовали плоские образцы из хромоникелевой аустенитной нержавеющей стали X18H9, химический состав которой дан в таблице 1.

Таблица 1. Химический состав стали X18H9

Fe	Ni	Mn	C	Ti	Cr	P	Si	S
Основа	10,66	1,67	0,12	0,5	17,0	0,032	0,8	0,0032

Образцы вырубались на штампе из прокатанных стальных пластин толщиной 0,35 мм, что позволило подготовить их с одинаковой геометрией рабочей части (рисунок 1). На головки образцов при помощи точечной сварки были закреплены пластины из той же стали во избежание их деформации или разрыва во время растяжения. В головках высверливали отверстия для установки в захватах разрывной машины.

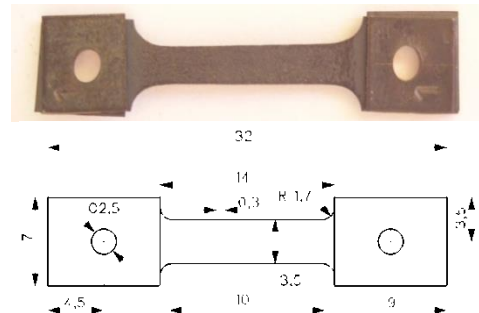


Рисунок 1. Форма и размеры образцов

После штамповки образцы подвергали аустенизирующему отжигу при температуре 1050 °С в течение 30 мин в отжиговой электрической печи «СЮЛ-044 2М2».

Часть подготовленных таким образом образцов облучали в водонаполненных экспериментальных каналах ядерного реактора ВВР-К до флюенса $1,9 \cdot 10^{19}$ н/см², при температуре, не превышавшей 80 К.

Механические испытания на одноосное растяжение осуществляли на универсальной испытательной машине «INSTRON-1195» при комнатной и отрицательных температурах со скоростью 0,5 мм/мин. Для проведения испытаний при температурах –20 и –60 °С была разработана специальная низкотемпературная камера [4]. Охлаждение и поддержание необходимой температуры осуществлялось при помощи автоматической контролируемой подачи в камеру жидкого азота.

Измерение геометрических размеров необлученных и радиоактивных образцов до и после деформации выполняли при помощи электронного микрометра «SONY LY-101».

Определение количества ферромагнитной α -фазы, образовавшейся в парамагнитной стали в процессе деформации, осуществлялось феррозондом «FERITSCOPE MP30» в приборных, относительных единицах. Пересчет значений α -фазы из относительных единиц в объемное процентное содержание (M_f) производился с помощью программы «Alpher», разработанной с использованием калибровочных эталонов.

Величины удельного электросопротивления стальных образцов после деформации и отжигов измеряли по методу амперметра-вольтметра.

Образцы подвергали пошаговой (~2 %) деформации с измерением величин электросопротивления и ферромагнитной фазы на каждом этапе растяжения при температурах +20, –20, –60 °С. Так как удельное сопротивление очень чувствительно к изменению площади поперечного сечения, растяжение образца производилась только до определенной степени деформации ($\epsilon_{\text{равн}}$), предвещающей появление локализованной деформации (шейки).

Для оценки величины уменьшения размеров поперечного сечения в ходе испытаний использовали уравнение:

$$\psi = \frac{S_0 - S_i}{S_0},$$

где S_0 – первоначальная площадь поперечного сечения образца, S_i – площадь сечения после деформации.

Величины локальных деформаций (ϵ) и напряжений (σ) рассчитывались по формулам:

$$\epsilon = \frac{\psi_i}{1 - \psi_i} \quad \sigma = \frac{P_i}{S_i}$$

Наряду с характеристиками прочности ($\sigma_{0,2}, \sigma_b$) и пластичности ($\epsilon_{\text{равн}}$) из диаграмм растяжения определяли величины критических напряжений ($\sigma_{\text{кр}}$) и деформаций ($\epsilon_{\text{кр}}$), соответствующих началу $\gamma \rightarrow \alpha$ перехода, а также значения плотности механической работы ($A = \frac{1}{V} \int \sigma d\epsilon$), необходимой для растяжения до предела прочности (σ_b).

После деформации образцы подвергали термическим отжигам (30 мин) при температурах от 200 °С до 800 °С с шагом 50 °С. На каждом этапе отжига проводилось измерение удельного сопротивления образцов и содержания в них мартенситной α -фазы.

ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты механических испытаний

На рисунке 2 приведены машинные диаграммы растяжения, для облученных нейтронами ($1,9 \cdot 10^{19}$ н/см²) и необлученных стальных образцов, деформируемых при низких температурах.

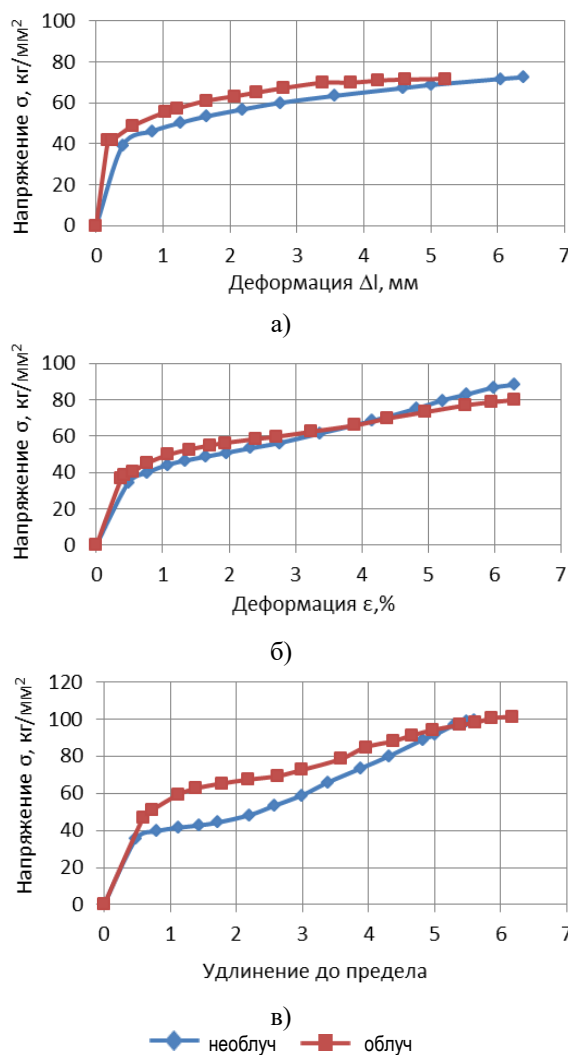


Рисунок 2. Диаграммы растяжения при температурах: (а) 20 °С, (б) –20 °С, (в) –60 °С необлученных и облученных нейтронами образцов стали X18H9

В результате обработки экспериментальных кривых найдены механические и энергетические характеристики, которые приведены в таблице 2.

Из таблицы 2 видно, что с понижением температуры испытания в значительной степени увеличивается предел текучести стали, но при этом уменьшается пластичность. Облучение нейтронами привело к дополнительному росту $\sigma_{0,2}$, а также к уменьшению значений плотности механической работы.

Начало образования макролокализации для облученных образцов происходит при степени деформации 27–33 %, а для необлученных образцов только при 45–50 %. При этом объемное содержание α -фазы, индуцированной деформацией, к моменту достижения конца растяжения практически одинаково для обоих образцов. В то же время из таблицы 2 следует, что с понижением температуры испытаний облучение нейтронами играет все меньшую роль в процессе начала образования шейки и все больше возрастает роль холодной деформации.

Деформационно-температурные изменения электросопротивления и намагниченности стальных образцов до и после облучения

На рисунке 3 приведены экспериментальные кривые изменения удельного электросопротивления (ρ) и количества ферромагнитной фазы в зависимости от степени деформации образцов стали X18H9 при комнатной температуре.

Видно, что на кривых $\rho=f(\epsilon)$ в самом начале деформации как необлученного, так и облученного нейтронами образцов наблюдается пик, который по данным магнитометрии совпадает с началом образования феррофазы.

Видно также, что образование α -мартенсита в облученном образце начинается несколько раньше и происходит более активно, чем в необлученном.

Необходимо также отметить, что для необлученной стали, также как и для облученной, наблюдались три характерных этапа изменения ρ – область пика, соответствующего началу мартенситного превращения, и два участка выхода ρ на насыщение: при деформациях 15–20 и 25–30 %.

Таблица 2. Механические и энергетические характеристики стали X18H9 в необлученном аустенизированном (1050 °C, 30 мин) и облученном нейтронами состояниях при различных температурах испытания

Флюенс н/см ²	Температура испытания, °C	$\sigma_{0,2}$, МПа	ϵ критич. ист, %	$\sigma_{T \rightarrow \alpha}$ критич. ист, %	σ_b , МПа	ϵ равн, %	A, МДж/м ³	M _T на σ_b , %
Необлученная	20	220	18	610	690	87	320	18
	-20	340	8	500	900	71	—	52
	-60	350	0,2	350	980	52	248	67
1,9·10 ¹⁹	20	420	18	610	700	64	293	21
	-20	440	4	580	800	62	—	50
	-60	510	0,2	510	990	56	268	60

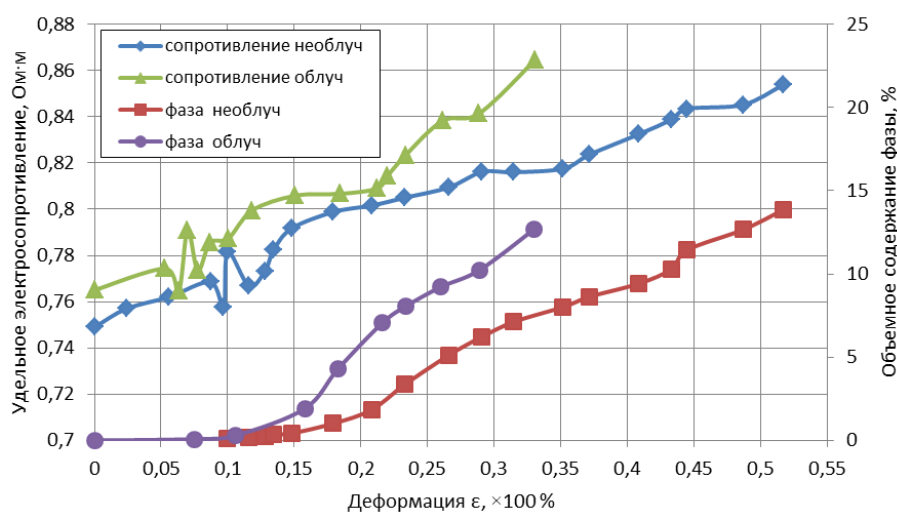


Рисунок 3. Графики изменения электросопротивления и кривые образования α -фазы в зависимости от степени деформации при температуре 20 °C

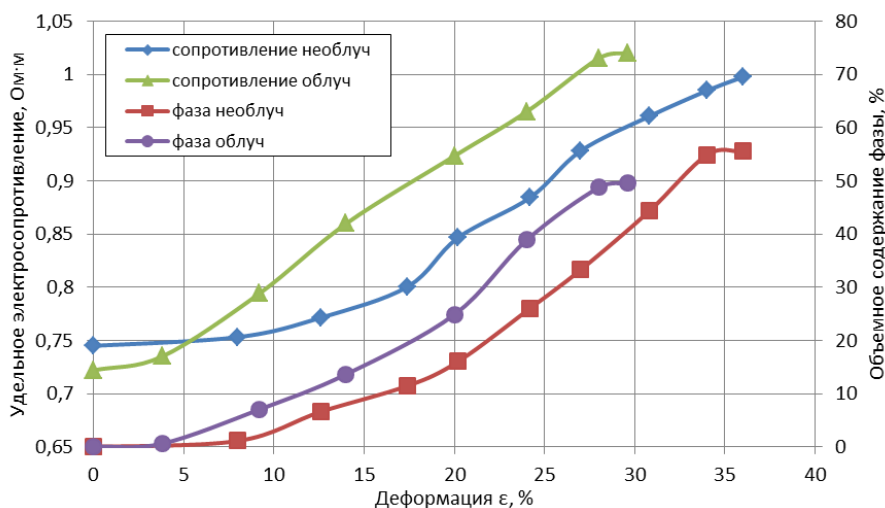


Рисунок 4. График зависимости изменения электросопротивления и образования α -фазы в зависимости от степени деформации при температуре $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$

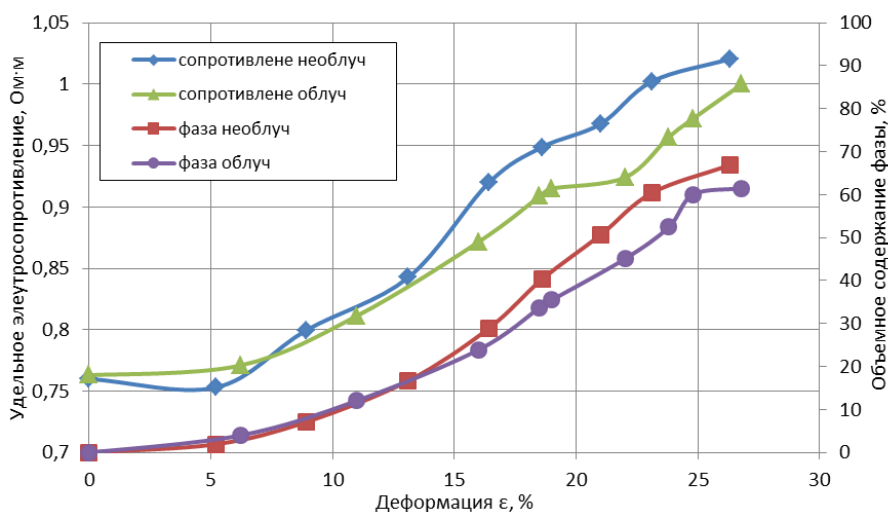


Рисунок 5. График зависимости изменения электросопротивления и образования α -фазы в зависимости от степени деформации при температуре $-60\text{ }^{\circ}\text{C}$

На основании анализа закономерностей прироста удельного электросопротивления стали в процессе испытания можно предположить, что образующаяся в результате деформации магнитная α -фаза и дефекты кристаллической решетки препятствуют свободному движению электрических зарядов.

На рисунке 4 приведен график зависимости изменения электросопротивления и намагнитченности стали от степени деформации при температуре $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Как видно из рисунка 4, с понижением температуры испытания до $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ пластичность уменьшилась и начало макролокализации (образование шейки) наступило раньше деформации по сравнению с комнатной температурой испытания. Для необлученных образцов шейка наметилась уже при степени деформации $\sim 35\%$, а для облученных снизилась еще больше до $\sim 30\%$.

Важным замечанием является то, что обнаружить характерные пики на кривых электросопротивления, которые соответствуют началу образования мартенсита деформации, при $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ не удалось. Данный факт связан, прежде всего, с малым количеством экспериментальных точек, что обусловлено ограниченным временем работы с высокорadioактивными образцами.

Понижение температуры испытания привело к тому, что скорость образования и накопления α -мартенсита в деформируемых стальных образцах резко возросла, а ее количество к началу макролокализации увеличилось до 50–55 объемных %.

На рисунке 5 приведены зависимости изменения электросопротивления и ферромагнитной α -фазы от степени деформации при температуре $-60\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Измерения содержания ферромагнитной α -фазы в холодно-деформируемом образце показали, что на начальных стадиях деформации распределение

α -фазы вдоль рабочей части образца равномерное, вплоть до начала локализации. Оказалось, что для отрицательной температуры испытания образование α -фазы начинается непосредственно с началом пластической деформации, а общее количество образовавшейся фазы при температуре -60°C в четыре раза больше, чем в эксперименте при комнатной температуре.

Обратный фазовый $\alpha \rightarrow \gamma$ переход в процессе отжига

Деформированные образцы, содержащие α -фазу, подвергали отжигам по 30 минут при температурах: 200, 250, 300, 350, 375, 400, 425, 450, 500, 600, 700, 800 $^\circ\text{C}$. После каждого отжига производились замеры распределения магнитной α -фазы вдоль рабочей части и электросопротивления деформированного образца. Результаты измерений для комнатной температуры деформации представлены на рисунке 6.

В ходе изотермических отжигов деформированной аустенитной стали установлено, что в интервале температур от 200 $^\circ\text{C}$ до 800 $^\circ\text{C}$ содержание мартенситной α -фазы интенсивно изменяется только в первые 20 минут, далее скорость уменьшения содержания α -фазы резко падает и после 30 минут отжига ее объемное содержание в образце уже практически не изменяется.

Из рисунка 6 видно, что деформирование необлученной и облученной стали до сравнимых значений электросопротивления приводит к образованию различного количества ферромагнитной мартенситной фазы, которой в облученной стали больше, чем в необлученной. Изменение удельного электрического сопротивления и количества ферромагнитной α -фазы после отжигов можно разделить на следующие основные температурные интервалы.

В интервале температур отжига от 20 до 300 $^\circ\text{C}$ электросопротивление необлученной стали существенным образом уменьшается, тогда как для облученной стали эта величина изменяется менее значительно.

Измерения удельного сопротивления необлученной и облученной стали в температурном интервале от 300 до 400 $^\circ\text{C}$ показали, что минимум этой величины наблюдается в районе 350 $^\circ\text{C}$, но после отжига около 400 $^\circ\text{C}$ происходит резкий прирост ρ . Многие исследователи связывают данный факт с миграцией атомов хрома, возможным образованием карбидов Cr_{23}C_6 , а также протеканием процессов перераспределения атомов Cr в фазанаклепанном аустените [5, 6]. Следует отметить, что резкое увеличение электросопротивления не приводит к приросту или уменьшению количества α -фазы в этом температурном интервале.

Из рисунка 6 видно также, что в температурном интервале 400–500 $^\circ\text{C}$ происходит значительное снижение величины электросопротивления, а объемное содержание мартенсита практически не изменяется. Исследования, проведенные нами ранее на высокооблученной стали [7, 8], показали, что после отжига при 450 $^\circ\text{C}$ количество феррофазы резко возрастает. Возможной причиной данного эффекта является особое состояние предварительно деформированной стали перед отжигами – растяжение было остановлено непосредственно перед началом макролокализации.

На заключительной стадии отжига в температурном интервале от 500 и до 800 $^\circ\text{C}$ происходит небольшое уменьшение электросопротивления как для необлученной, так и для облученной нейтронами стали, причем в конце отжига достигаются примерно одинаковые значения ρ вне зависимости от исходного состояния материала.

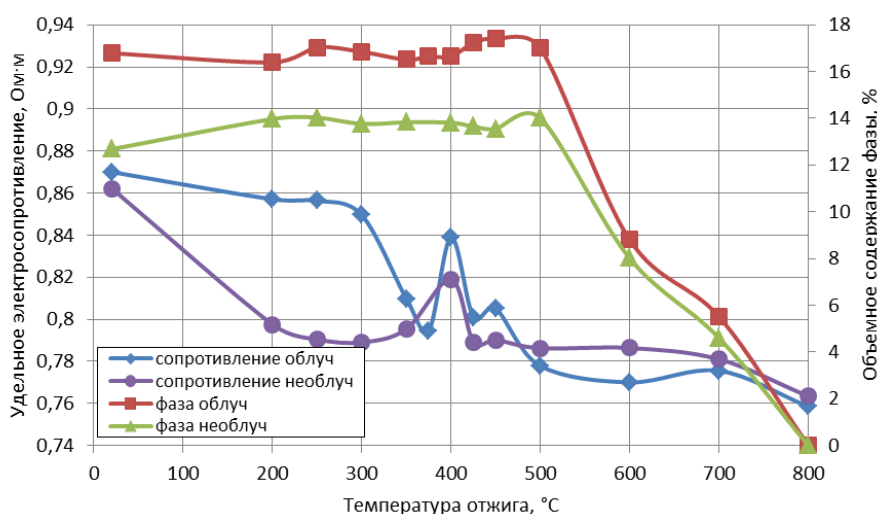


Рисунок 6. Изменения электросопротивления и объемного содержания α -фазы процессе отжига в деформированных при комнатной ($+20^\circ\text{C}$) температуре необлученных и облученных нейтронами образцах стали X18H9

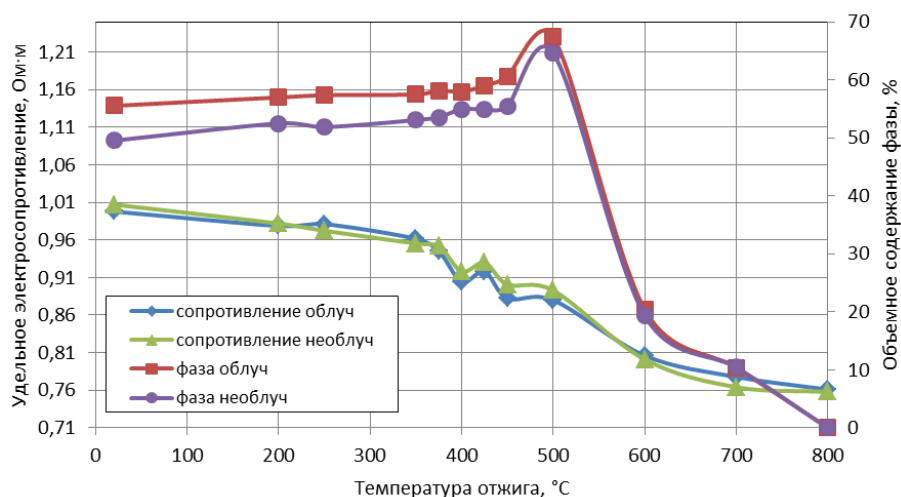


Рисунок 7. Изменения электросопротивления и объемного содержания α -фазы в деформированном при температуре -20°C образце стали X18H9 в процессе отжига

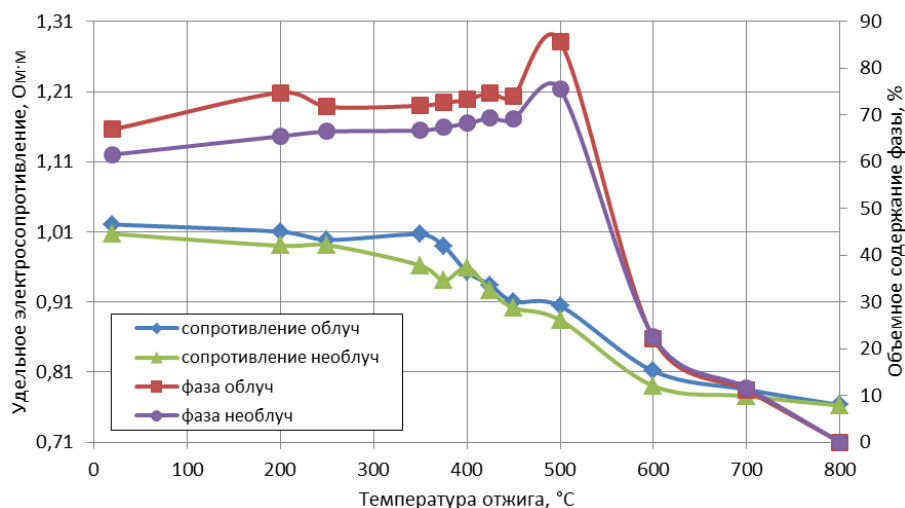


Рисунок 8. Изменения электросопротивления и объемного содержания фазы в деформированном при температуре -60°C образце стали X18H9 в процессе отжига

При температурных испытаниях наблюдается несколько иная картина изменения содержания ферромагнитной фазы. В интервале температур $500\text{--}800^{\circ}\text{C}$ начинается и интенсивно протекает обратное мартенситное превращение, которое практически заканчивается после отжига при $700\text{--}800^{\circ}\text{C}$, что подтверждается большим количеством литературных данных.

На рисунке 7 приведены результаты отжига образцов, деформированных при -20°C .

Как и в случае отжига образцов, деформированных при комнатной температуре, в данном эксперименте можно полагать, что процесс изменения феррофазы и удельного электрического сопротивления протекает в 3-х основных температурных интервалах.

В первом интервале ($200\text{--}400^{\circ}\text{C}$) наблюдается слабое уменьшение электросопротивления, которое

сопровождается увеличением количества феррофазы на 2–3 %. Пик прироста электросопротивления наблюдается после отжига при 425°C , что на 25 градусов выше аналогичного пика для комнатной температуры деформирования.

Второй температурный интервал ($400\text{--}500^{\circ}\text{C}$) характеризуется резким увеличением содержания феррофазы в среднем на 6–8 % для необлученной и облученной стали, который сопровождается замедлением скорости отжига электросопротивления.

Третий этап отжига в интервале $500\text{--}800^{\circ}\text{C}$ характеризуется интенсивным уменьшением α -мартенсита деформации и постепенным возвратом удельного электросопротивления к практически исходному значению – $0,76\text{ мкОм}\cdot\text{м}$.

На рисунке 8 приведены результаты измерений электромагнитных величин в экспериментах по отжигам образцов, деформированных при -60°C .

Из рисунка 8 видно, что, как и при других температурах испытания, процессы отжига электросопротивления и изменения количества феррофазы в стали, деформированной при -60°C , также протекают в 3-х температурных интервалах, но в тоже время есть и определенные отличия. Так, например, в интервале температур $200\text{--}400^{\circ}\text{C}$ эффект отжига электросопротивления меньше по сравнению с результатами, полученными при других температурах испытания. Скорее всего, данный факт связан с тем, что точечные дефекты, образовавшиеся в процессе пластической деформации при отрицательной температуре, находятся в глубоких «потенциальных ямах» за счет высоких внутренних напряжений, обусловленных большим количеством мартенсита деформации ($\sim 75\%$), а также высокой плотностью дислокаций. Повышение температуры отжига до 500°C привело к замедлению скорости уменьшения электросопротивления и росту количества мартенситной α -фазы еще больше, чем при температуре деформации -20°C .

При более высоких температурах ($550\text{--}650^{\circ}\text{C}$) начинается интенсивный отжиг электросопротивления, который сопровождается падением феррофазы, затем, в температурном интервале ($650\text{--}800^{\circ}\text{C}$) протекает процесс интенсивного $\alpha \rightarrow \gamma$ перехода и при температуре 800°C количество мартенситной феррофазы становится равным нулю.

ЛИТЕРАТУРА

1. Максимкин О.П. Фазово-структурные процессы и их роль в упрочнении и охрупчивании облученных металлических материалов // Диссертация на соискание ученой степени доктора физ.-мат. наук. – г.Алматы. – 1996.
2. Бердалиев Д.Т. Исследование прямого мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращения, индуцированного деформацией в нержавеющей сталях 12X18N10T и X18N9, облученных нейтронами и заряженными частицами // Диссертация на соискание ученой степени кандидата физ.-мат. наук. – г.Алматы. – 2010.
3. Рахашев Б.К. Исследование обратного мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращения в облученных высокоэнергетическими частицами, деформированных нержавеющей сталях 12X18N10T и 08X16N11M3 // Диссертация на соискание ученой степени кандидата физ.-мат. наук. – г.Алматы. – 2010.
4. Рыбин С.В., Максимкин О.П., Гусев М.Н. Создание испытательных низко- и высокотемпературной камер и их применение для изучения деформационно-пластического поведения облученных материалов // Вестник НЯЦ РК. – вып. 2. – 2010. – С. 75-80.
5. Чухлеб А.Н., Мартынов В.П. «Фазовые превращения $\alpha \leftrightarrow \gamma$ при старении в сталях типа 18-8, предварительно деформированных при отрицательной температуре»- физика металлов и металловедение. – 1960. – т. 10. – вып. 2. – С. 240-244
6. Жубаев А.К. Исследование пластической деформации нержавеющей стали методом мессбауэровской спектроскопии и рентгеноструктурного анализа. //Труды II конференции-конкурса НИОКР молодых ученых и специалистов НЯЦ РК. – Алматы. – 13-15 мая 2002. – С. 231-244.
7. Максимкин О.П., Рахашев Б.К. Обратное мартенситное $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращение в стали 12X18N10T облученной до 56 снв в реакторе БН-350 и деформированной при 293K // Вестник НЯЦ РК. – 2009. – вып.3. – С.231-244.
8. Максимкин О.П., Мережко М.С., Рубан С.В. Некоторые особенности обратного мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращения в стали 12X18N10T, облученной до высоких повреждающих доз в быстром реакторе БН-350 // Вестник НЯЦ РК. – 2011. – вып.2. – С.109-114.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате комплексных исследований прямого и обратного мартенситного превращения в необлученной и облученной нейтронами аустенитной стали X18N9, деформированной при различных температурах, получены следующие новые результаты:

- С ростом степени деформации стальных образцов возрастает электросопротивление (ρ) и количество ферромагнитной мартенситной α -фазы (M_f). Прирост ρ и M_f тем больше, чем ниже температура растяжения.

- В интервале температур отжига $200\text{--}400^{\circ}\text{C}$ наблюдается небольшое, порядка $1\text{--}3\%$, увеличение количества ферро-фазы, которое сопровождается уменьшением удельного электрического сопротивления.

- Уменьшение содержания магнитной фазы при отжиге наблюдается только выше температуры 500°C . Наряду с тем для температур деформации -20 и -60°C обнаружен пик прироста (до $+10\%$) магнитной α -фазы при температурах $400\text{--}500^{\circ}\text{C}$.

- Количество ферромагнитной фазы полностью отжигается при температуре 800°C .

Авторы выражают признательность сотрудникам лаборатории Рубану С.В. и Шлимасу Д.М. за помощь в проведении радиационных экспериментов.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта №AP05130527 Министерства образования и науки Республики Казахстан (МОН РК).

**СӘУЛЕЛЕНБЕГЕН ЖӘНЕ НЕЙТРОНДАРМЕН СӘУЛЕЛЕНДІРІЛГЕН X18H9 БОЛАТТЫҢ
ДЕФОРМАЦИЯ ЖӘНЕ КІЙДІРУ ПРОЦЕСТЕРІНДЕГІ ЭЛЕКТР КЕДЕРГІСІ МЕН
МАГНИТТЕЛУІНДЕГІ ӨЗГЕРІСТЕР**

^{1, 2)} О.П. Максимкин, ¹⁾ Е.Е. Нұрғали

¹⁾ *Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан*

²⁾ *МИФИ ұлттық ядролық зерттеу университеті, Мәскеу, Ресей*

ВВР-К ядролық реакторында нейтрондармен сәулелендірілген X18H9 аустенитті болаттың электромагниттік қасиеттерде деформациялық және термиялық өзгерістерді зерттеу бойынша эксперименттердің нәтижелері ұсынылды және талқыланды. Тікелей және кері фазалық мартенситті түрленуіне ерекше көңіл бөлінеді. Сәулелендірілген реакторлық болатты күйдіру (~450 °C) кезінде және теріс температурада (-20 және -60 °C) деформацияланған кезінде ферромагнитті α -фазаның мөлшерінің қосымша өсу әсері байқалады.

**CHANGES IN THE ELECTRICAL RESISTIVITY AND MAGNETIZATION OF NON-IRRADIATED
AND IRRADIATED X18H9 STEEL IN DEFORMATION AND ANNEALING PROCESSES**

^{1, 2)} O.P. Maksimkin, ¹⁾ Y.Y. Nurgali

¹⁾ *Institute of Nuclear Physics, Almaty, Kazakhstan*

²⁾ *National Research Nuclear University MEPhI, Moscow, Russia*

The results of experiments on the study of deformation and thermal changes in the electromagnetic properties of austenitic steel X18H9 subjected to neutron irradiation in a WWR-K nuclear reactor are presented and discussed. Particular attention is paid to the direct and inverse phase martensitic transformation. The effect of an additional increase in the amount of the ferromagnetic α -phase during annealing (~450°C) of irradiated, deformed at negative temperatures (-20 and -60 °C) of reactor steel is observed.