

УДК 620.196.19

ЭВОЛЮЦИЯ СТРУКТУРЫ И ФАЗОВОГО СОСТАВА ОБЛУЧЕННОЙ НЕЙТРОНАМИ СТАЛИ 12X18N10T ПОСЛЕ ДЛИТЕЛЬНОГО ИЗОТЕРМИЧЕСКОГО ОТЖИГА

Коянбаев Е.Т., Сапатаев Е.Е., Кожаметов Е.А., Кукушкин И.М.,
Курбанбеков Ш.Р., Миниязов А.Ж., Букина О.С.

Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В работе представлены результаты исследования по выявлению и установлению возможных причин различий в структуре и свойствах образцов материала чехла ТВС, экранного типа реактора БН-350 в зависимости от температуры и длительности пост-радиационных испытаний. Установлено, что длительное старение образцов материала чехла ТВС реактора БН-350 до 5000 ч приводит к увеличению концентрации и размера выделений карбидов (типа Me_{23}C_6). Сделано предположение, что изменения в микроструктуре: размер зерна, концентрация вторичных выделений, вытеснение карбидов на границы зерен и скопление их на тройных стыках, происходит не только при увеличении температуры испытания в кратковременных промежутках (650–1050 °С изохорный отжиг), но и при длительном воздействии высоких температур (5000 ч, 400 °С, 600 °С, изотермически отжиг).

ВВЕДЕНИЕ

Конструкционные нержавеющие стали аустенитного класса 12X18N10T применялись в качестве материалов для изготовления чехлов (шестигранных труб) тепловыделяющих сборок (ТВС) 1-го, 2-го и 3-го поколений реактора на быстрых нейтронах БН-350. В настоящее время реактор БН-350 выведен из эксплуатации, отработанное топливо (ОЯТ) упаковано в контейнеры и отправлено на долговременное «сухое» хранение.

Роль конструкционных материалов состоит не только в обеспечении их стабильности на весь период эксплуатации тепловыделяющих сборок, но и в удержании внутри твэла продуктов деления топлива вовремя длительно «мокрого» или «сухого» хранения отработавших ТВС (ОТВС). По существу, радиационная и коррозионная стойкость конструкционных материалов являются основными в решении ключевых вопросов безопасности реакторной установки. Учитывая, что контроль или возможность измерения температуры, давления или состояния топливных сборок при хранении не предусмотрены, единственным актуальным методом для оценки состояния топливных сборок остается проведение модельных исследований с облученными материалами и экстраполяция экспериментальных данных на последующие условия хранения ТВС [1–3].

Начиная с 2001 года, в рамках декомиссии реактора БН-350 проводятся комплексные материаловедческие работы, направленные на характеризацию состояния материала чехлов после длительного облучения и хранения [2]. Для определения остаточного ресурса конструкционных сталей ТВС в период длительного хранения ОЯТ были проведены испытания в условиях, имитирующих длительное «сухое» хранение ОЯТ, образцов сталей 12X18N10T отработавших ТВС экранного типа реактора БН-350 [3]. Целью настоящей работы является выявление и установление возможных причин различий в структуре и свойствах образцов материала чехла ТВС эк-

ранного типа реактора БН-350 в зависимости от температуры и длительности пост-радиационных испытаний.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКИ ИССЛЕДОВАНИЯ

Объектом исследований являлись поверхности образцов в форме параллелепипеда с характерными размерами 10×4×0,8 мм, вырезанные из пластин размерами 50×20×2 мм, которые, в свою очередь, вырезались из частей чехловых труб отработанных ТВС реактора БН-350 экранного типа, от центра активной зоны (ЦАЗ). Подробные характеристики выбранных образцов стали приведены в таблице.

Таблица. Характеристики отобранных образцов ОТВС РУ БН-350

Наименование материала	Наработка, эфф. сутки	Φ , 10^{23} см^{-2} (макс. доза, сна)	Мощность реактора, МВт	$T_{\text{вх}}, ^\circ\text{C} - T_{\text{вых}}, ^\circ\text{C}$	Макс. скорость набора дозы, 10^{-6} сна/с
ЦЦ-15Т	291,8	1,731 (~48)	650	285 – 290 440 – 450	1,91

Длительные термические испытания образцов материала чехла различных ОТВС реактора БН-350 были проведены в лабораторных муфельных печах SNOL-8,2/1100 при температурах 400 °С и 600 °С в среде воздуха. Продолжительность испытания была условно разделена на три временных промежутка: «кратковременное» испытание длительностью до 10 ч; «среднее» испытание длительностью до 300 ч; «длительное» испытание длительностью до 5000 ч.

Металлографические и электронно-микроскопические исследования выполнялись на шлифах продольных сечений. Приготовление шлифов производилось по общепринятой методике. Металлографические исследования были выполнены на оптическом микроскопе Метам ЛВ-41 при увеличениях 50÷1000 крат, в светлом поле. Электронно-микроскопические исследования проводились на сканирующем электронном микроскопе Tescan Vega3, в ре-

жимах вторичных и отражённых электронов с применением системы энергодисперсионного анализа X-Act. Размер, концентрация и объемная доля выделений определялись по снимкам структуры с 500-кратным увеличением. При помощи дифрактометра Empyrean фирмы PANalytical с использованием Cu K_α -излучения были получены дифрактограммы образцов. Микротвердость образцов была измерена на микротвердомере Q10A+ методом Виккерса при нагрузке 200 г с выдержкой 10 с. На каждом образце проводили по 15–20 измерений с определением среднего значения микротвердости материала и стандартного отклонения.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИСПЫТАНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рисунке 1 представлены изображения изменения микроструктуры материала ОТВС центрального типа ЦЦ-15Т в зависимости от продолжительности изотермического испытания. Изображения микроструктуры были получены на оптическом микроскопе в отраженном свете в режиме светлого поля при увеличении $\times 50$ и $\times 1000$ крат.

После кратковременного (10 ч) изотермического отжига при температурах 400 °С и 600 °С существенных изменений в структуре материала чехла ОТВС не наблюдалось. Сохранение структуры материала ОТВС из аустенитной стали 12X18H10T при кратковременных (изотермических) отжигах при температурах вплоть до 650 °С наблюдается также в работе [3]. Из полученных данных следует, что до и после кратковременного отжига образцы имеют минимальный размер зерна (4–6 мкм), соответствующий 12–13 баллу. По границам зерен на облученной стали 12X18H10T были обнаружены карбиды типа Me_{23}C_6 и большая концентрация вторичных выделений в матрице зерен. Также в теле зерна наблюдалось содержание крупных включений правильной геометрической формы, предположительно карбонитридов титана.

Металлографические изображения поверхности отоженных образцов при температуре 400 °С и времени отжига 300 ч показали незначительный рост среднего размера зерен. Рост содержания мелких выделений в зерне наиболее ярко выражен после 300 ч отжига. После 5000 ч изотермического отжига (400 °С) характерной чертой структуры образца является большое число карбидов металлов (хрома), расположенных по границам зерен (рисунок 2, д) и уменьшение концентрации вторичных выделений в матрице зерна. Также зафиксирован рост среднего размера зерен до 14 мкм, что соответствует 10–11 баллу.

Длительное старение при 600 °С до 300 ч привело к увеличению концентрации и размера выделений карбидов (типа Me_{23}C_6), которые преимущественно расположены по границам зерен. Необходимо отметить, что слабыми местами скопления карбидов являются тройные стыки зерен, как видно из рисунка 1, г.

Значительные изменения в структуре (увеличение зерен) материала наблюдается при продолжительности испытаний 5000 ч. Исследования показали рост среднего размера зерен в результате увеличения времени отжига. После испытаний с выдержкой 5000 ч образцы имеют минимальный размер зерна (18–20 мкм), соответствующий 7–8 баллу. Замечено, что при длительном воздействии высоких температур происходит растворение мелких включений в теле зерна, которые уже встречаются эпизодически. Так же выявлено большое количество мелких зерен с рекристаллизованной микроструктурой, не содержащих вторичных выделений.

Авторы работы [4] получали схожие результаты, при температурах испытания от 650 °С до 1050 °С с выдержкой от 10 минут до 1 часа. Таким образом, можно предположить, что схожие изменения в микроструктуре: размер зерна, концентрация вторичных выделений, вытеснение карбидов на границы зерен и скопление их на тройных стыках, происходит не только при увеличении температуры испытания в кратковременных промежутках (650–1050 °С, изохорный отжиг), но и при длительном воздействии высоких температур (5000 ч, 400 °С, 600 °С, изотермически отжиг).

После испытаний (5000 ч, 600 °С) зафиксировано коагуляция карбидов типа Me_{23}C_6 , расположенных по границам зерен, на более крупные, которые уже практически полностью вытеснены на тройные стыки зерен (рисунок 2, в), при этом на границах зерен зафиксирована обеднение Cr, что хорошо наблюдается при картировании поверхности образцов (рисунок 2, е). Интересен и тот факт, что обеднение Cr на границах зерен не наблюдается при времени старении 300 ч, хотя уже при этих условиях наблюдалось образование карбидов на тройных стыках. Можно предположить, что с увеличением времени старения при температуре 600 °С, хром на границах зерен затрачен на коагуляцию крупных карбидов типа Me_{23}C_6 на тройных стыках.

При проведении картирования на образце ОТВС после 5000 ч (600 °С) испытаний на местах образования крупных карбидов типа Me_{23}C_6 зафиксировано высокое содержание Mn (рисунок 2, г). Также были выявлены выделения размерами 2–3 мкм с высоким содержанием титана и никеля (рисунок 2, д, е).

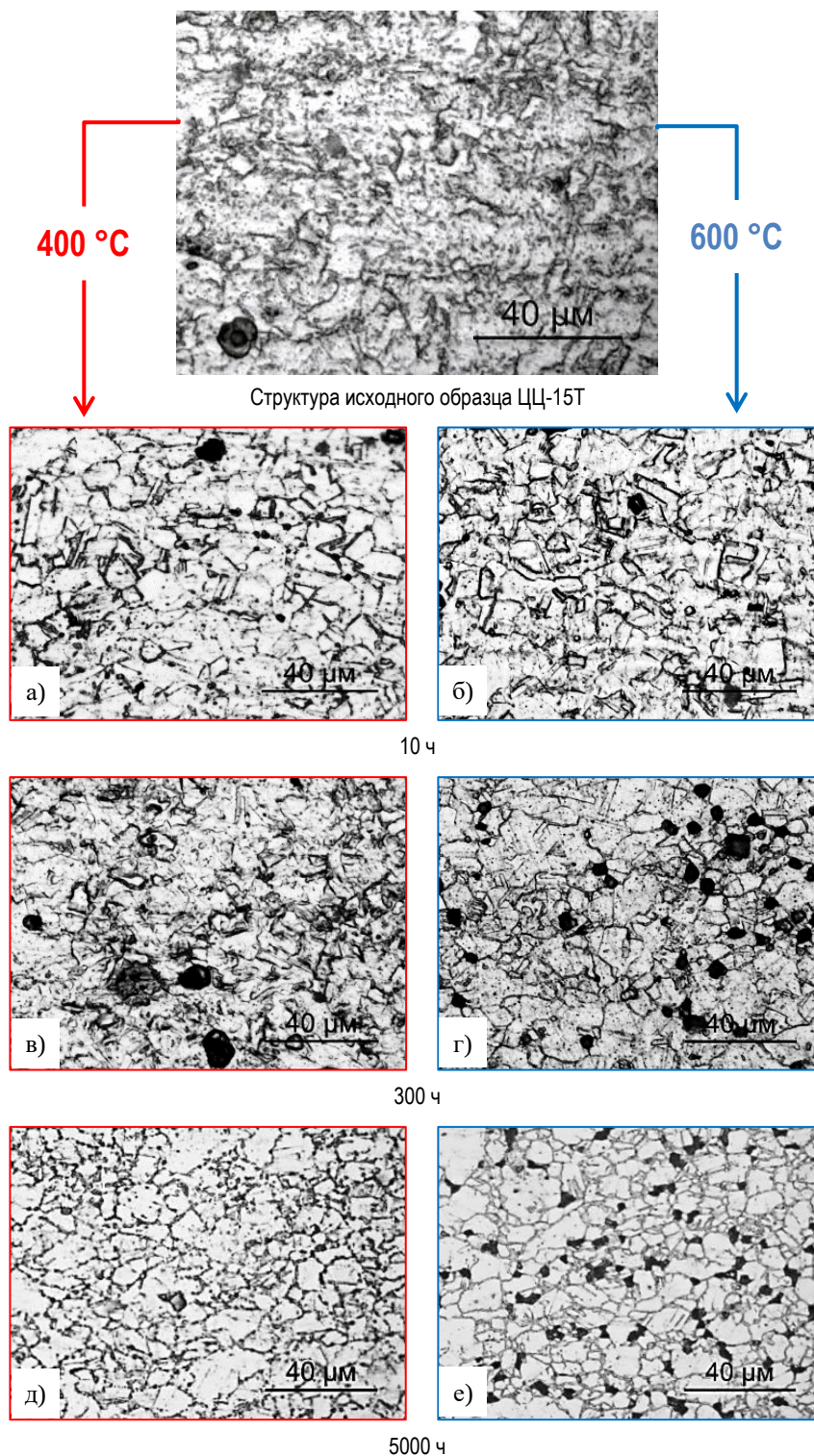


Рисунок 1. Эволюция микроструктуры стали 12Х18Н10Т при изотермическом
пострадиационном отжиге

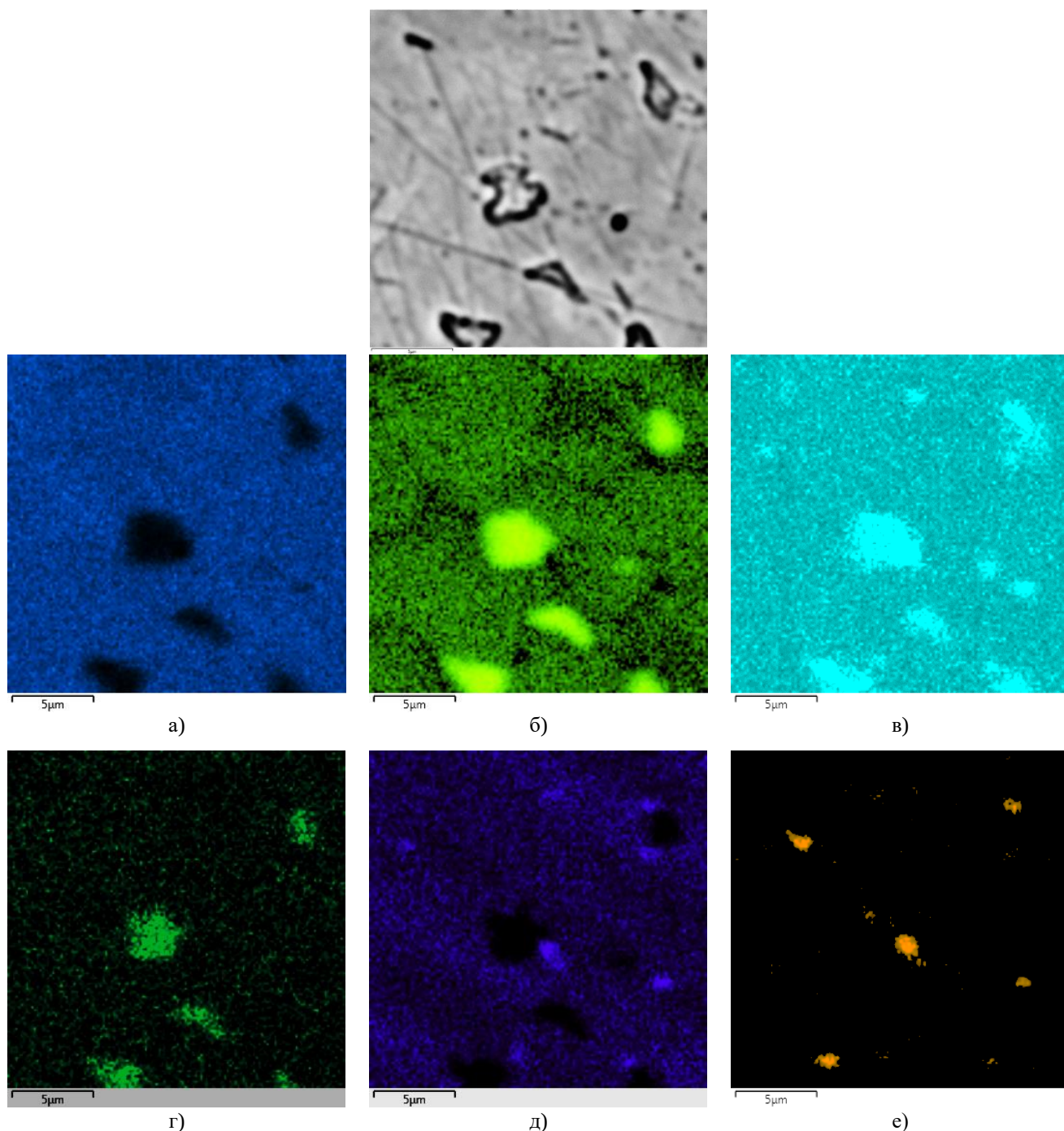


Рисунок 2. Результаты пространственного распределения элементов в образце чехла ОТВС экранного типа ЦЦ-15Т после длительного старения (5000 ч, 600 °С, изотермически отжиг): (а) – Fe; (б) – Cr, (в) – C (г) – Mn, (д) – Ni, (е) – Ti

По результатам рентгеноструктурного анализа фазовый состав образцов представлен одной основной фазой раствора γ -(Fe, Cr, Ni, ...) с ГЦК решеткой (аустенит). Кроме линий основной фазы на дифрактограммах практически всех образцов выявились линии фазы α -(Fe, Cr, Ni, ...) с ОЦК или ОЦТ решеткой (феррит или мартенсит, рисунок 3). Интенсивность линий фазы различна как для разных образцов, так и для двух сторон каждого образца и имеет повышенные значения для образцов, прошед-

ших испытания при 5000 ч без явно выявленной зависимости от температуры.

Следует заключить, что увеличение длительности отжига при 400 °С не приведет к значительной релаксации деформационных дефектов упаковки, но может привести к изменениям параметров решетки аустенитной фазы в случае продолжения распада аустенита с образованием ферритной фазы в приповерхностных слоях материала.

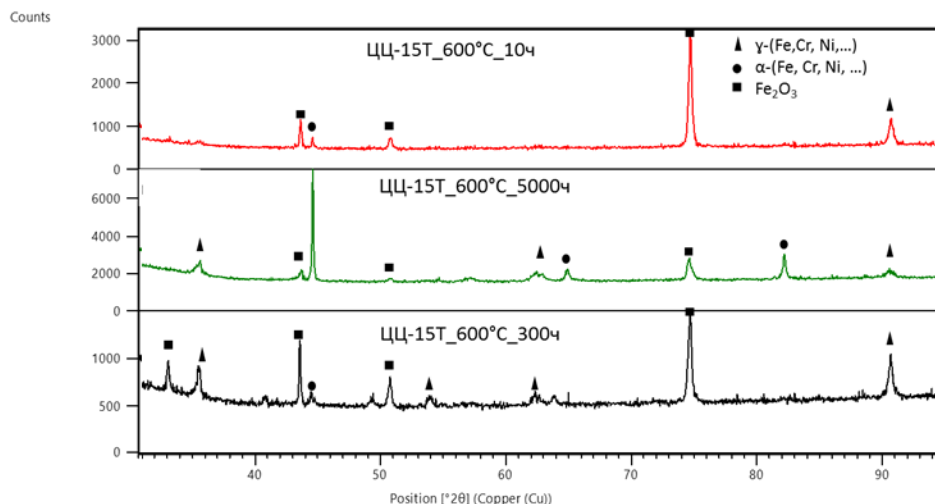


Рисунок 3. Дифрактограммы образцов чехла ТВС ЦЦ-15Т после испытаний в среде воздуха

Увеличение длительности отжига при 600 °С на воздухе должно привести к увеличению слоя окислов на поверхности образцов, окончательному исчезновению ферритной фазы и более полной релаксации деформационных дефектов упаковки в зернах аустенита, которое должно привести к снижению эффективного значения параметра решетки.

Выявить и зафиксировать распределение α -фазы в облученных образцах, после испытаний, с помощью оптического и сканирующего электронного микроскопа было невозможно, так как, по литературным данным, трудность визуальной регистрации α -фазы объясняется ее очень высокой хрупкостью, вследствие чего относительно тонкие пластины α -фазы при приготовлении микрошлифов выкрашиваются [5]. Для детального рассмотрения образования и выявления формы его распределение в образцах ОТВС при длительном старении необходимо пересмотреть методы и подходы пробоподготовки.

Влияние изотермического отжига на микротвердость облученных образцов

Кривая изменения микротвердости облученного стального образца материала чехла ОТВС экранного типа представлена на рисунке 4. На графике совмещены результаты измерений, полученные для образцов после изотермического отжига при температуре 400 °С и 600 °С с длительностью до 5000 ч.

При температуре 400 °С изотермического отжига с ростом длительности времени старения зафиксирована уменьшение микротвердости до 14 %. После времени отжига 300 ч наблюдается некоторое замедление снижения микротвердости, возможно связанные с образованием когерентных мелкодисперсных выделений и карбидов, которые образовались при длительном изотермическом отжиге.

При температуре 600 °С изотермического отжига видно, что падение прироста микротвердости на 68 % произошло уже при выдержке 10 ч. Нужно отметить тот факт, что падение микротвердости до

68 % происходит не при выдержке 10 ч, а уже при нагреве и охлаждении материала (без выдержки). Данный факт был зарегистрирован авторами работ [4]. Последующая выдержка образцов в течение 300 ч приводит к уменьшению значений микротвердости, после увеличения времени выдержки до 5000 ч имеет место небольшое увеличение микротвердости.

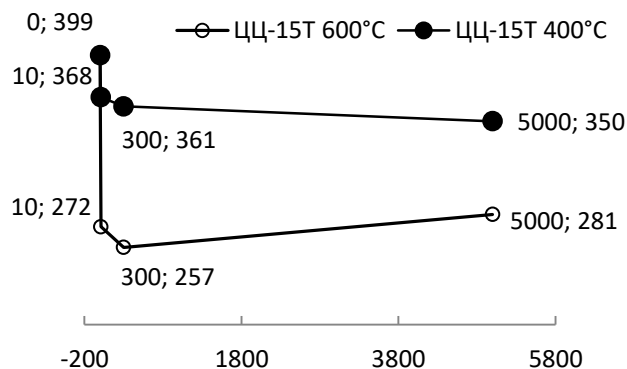


Рисунок 4. Влияние пост-радиационного изотермического отжига на микротвердость облученной стали

Авторы работ [4] при изохронных отжигах (при температуре 1050 °С) получали схожую кривую зависимости микротвердости и предполагали, что основной вклад в упрочнение при повышении температуры вносят строчечные глобулярные карбиды титана и пластинчатые карбиды Me_{23}C_6 , частично когерентные с аустенитной матрицей. Можно предположить, что данное упрочнение происходит не только с увеличением температуры, но и при увеличении времени выдержки до 5000 ч при постоянной (600 °С) температуре отжига.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках данной работы по результатам комплексного материаловедческого исследования проведена сравнительная оценка изменения структуры об-

разцов материала чехла ОТВС экранного типа после длительных термических испытаний при температурах 400 °С и 600 °С в среде воздуха.

После кратковременного (10 ч) изотермического отжига при температурах 400 °С и 600 °С существенных изменений в структуре материала чехла ОТВС не обнаружено. Увеличение продолжительности испытаний до 300 ч приводит к увеличению концентрации и размера выделений карбидов (типа

Me₂₃C₆), которые преимущественно расположены по границам зерен, слабыми местами скопления карбидов являются тройные стыки зерен. При времени длительности изотермического отжига 5000 ч зафиксирована коагуляция карбидов типа Me₂₃C₆, расположенных по границам зерен, на более крупные, которые уже практически полностью вытеснены на тройные стыки зерен, при этом на границах зерен зафиксировано обеднение Cr.

ЛИТЕРАТУРА

1. Особенности структуры и механических свойств чехлов отработавшей экранной сборки реактора БН-350 // Скаков М.К., Ситников А.А., Бакланов В.В., Яковлев В.И., Коянбаев Е.Т., Сапатаев Е.Е., Миниязов А.Ж. // Вестник НЯЦ РК. Выпуск 4. Июнь 2016.
2. Различия структуры и свойств поверхностей шестигранного чехла отработавших твс реактора бн-350 // О.П. Максимкин, О.В. Тиванова, Л.Г. Турубарова // Институт ядерной физики НЯЦ РК, г. Алматы, Казахстан.
3. Исследование изменений структуры и физико-механических характеристик аустенитной стали 12Х18Н10Т в результате реакторного облучения и последующего термического воздействия // Скаков М.К., Бакланов В.В., Коянбаев Е.Т. Вестник Государственного университета имени Шакарима города Семей №4 (72) 2015.
4. Исследование чехла экранной сборки Э-26 после 22-летней эксплуатации в реакторе БОР-60 // В.К. Шамардин, З.Е. Островский, А.М. Печерин, В.М. Косенков, В.В. Яковлев, Ф.В. Рисованая. //Сб. докладов V Междотраслевой конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 1998, т. 2, ч. 2, с. 25–40.
5. Исследования микроструктуры и механических свойств стали 08Х18Н10Т после облучения в активной зоне реактора ВВЭР-1000 // В.С. Неустров, В.Г. Дворецкий, З.Е. Островский, В.К. Шамардин, Г.А. Шиманский // ГНЦ РФ НИИАР, г. Димитровград, Ульяновская область, Россия.
6. Исследование радиационно-термической и коррозионной стойкости конструкционных материалов реакторов БН-350 и ВВР-К/ О.П. Максимкин, М.Н. Гусев, А.В. Яровчук // Экспериментальные исследования в области радиационной физики твердого тела, радиационного материаловедения и ядерной физики.– Курчатов.– 2010.– 243 с.
7. Влияние температуры и времени пост-радиационной термообработки на выделения вторичных фаз в облученной нейтронами стали 12Х18Н9Т // Цай К.В., Максимкин О.П., Турубарова Л.Г., Чакров П.В. Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан.
8. Структура, прочность и радиационная повреждаемость коррозионно-стойких сталей и сплавов // Паршин А.М. // Челябинск «Металлургия Челябинское отделение» // 1988.
9. Crystallography Open Database – an open-access collection of crystal structures / S. Gražulis, D. Chateigner, R. T. Downs, A. F. T. Yokochi, M. Quirós, L. Lutterotti, E. Manakova, J. Butkus, P. Moeck & A. Le Bail.– J. Appl. Cryst.– 2009.– 42.– С. 726–729.
10. Пострадиационные испытания конструкционных сталей – материалов чехлов отработавших ТВС реактора БН – 350// С.Б. Кислицин, А.С. Диков, Д.А. Сатпаев, А.С. Ларионов// 11th International Conference “Interaction of Radiation with Solids”, September 23-25, 2015, Minsk, Belarus.
11. Металлография // К.П. Бунин, А.А. Баранов // Москва, 1970.
12. Исследование особенностей микроструктуры материала отработавшего чехла центральной ОТВС ЦЦ-15Т реактора БН-350. // Скаков М.К., Ситников А.А., Бакланов В.В., Коянбаев Е.Т., Сапатаев Е.Е. // Тезисы докладов VII международной научно-практической конференции, 2016, С. 146.

ҰЗАҚ ИЗОТЕРМИЯЛЫҚ ҚЫЗДЫРУДАН КЕЙІНГІ НЕЙТРОНМЕН СӘУЛЕЛЕНГЕН 12Х18Н10Т БОЛАТТЫҢ ФАЗАЛЫҚ ҚҰРАМЫ ЖӘНЕ ҚҰРЫЛЫМДЫҚ ЭВОЛЮЦИЯСЫ

**Е.Т. Коянбаев, Е.Е. Сапатаев, Е.А. Кожаметов, И.М. Кукушкин,
Ш.Р. Курбанбеков, А.Ж. Миниязов, О.С. Бүкина**

КР ҰҰО «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Бұл жұмыста, температураға және пост-радиациялық сынақ ұзақтығына тәуелді, экрандық типті БН-350 реакторының ЖБЖ-нің қабықшасы жасалған материал үлгісінің қасиетті және құрылымдық ерекшеліктерінің себептерін анықтап, зерттеу нәтижесі көрсетілген. БН-350 реакторының ЖБЖ-нің қабықшасы жасалған материал үлгісінің ескіруінің ұзақтығы 5000 сағатқа жеткен кезде, карбид (Me₂₃C₆ типті) бөліну көлемі және концентрациясының артуы анықталды. Микрoқұрылымдық өзгерістерінде: түйіршік көлемі, қосалқы концентрация бөлінуі, карбидтерді түйіршік шекарасына ығыстыру және олардың үштік түйісте жиналуы, қысқа мерзімді сынақтың температура артуы кезінде ғана емес (650–1050 °С изохорный отжиг), жоғары температураның ұзақ әсері кезінде де болады (5000 ч, 400 °С, 600 °С, изотермически отжиг).

THE EVOLUTION OF THE STRUCTURE AND THE PHASE COMPOSITION OF 12X18H10T STEEL
IRRADIATED BY NEUTRONS AFTER LONG-TERM ISOTHERMAL ANNEALING

E.T. Koyanbaev, E.E. Sapataev, E.A. Kozhakhmetov, I.M. Kukushkin,
Sh.R. Kurbanbakov, A.Zh. Miniyazov, O.S. Bukina

Branch "Institute of Atomic Energy" NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The paper presents the results of a study on the possible causes of differences in the structure and properties of the material samples of the FA`s cover (the screen type of the BN-350 reactor), depending on the temperature and duration of the post-radiation tests. It has been established that prolonged aging of the samples of the BN-350 reactor fuel assembly material up to 5000 hours leads to an increase in the concentration and size of carbide precipitates (such as Me_{23}C_6). It is assumed that changes in the microstructure: the grain size, the concentration of secondary precipitates, the displacement of carbides to the grain boundaries and their accumulation at triple junctions, occurs not only with an increase in the test temperature in short-time intervals (650–1050 °C isochoric annealing), and also in long-time exposure to high temperatures (5000 h, 400 °C, 600 °C, isothermally annealed).