

УДК 621.384.65.038

## ОСОБЛИВОСТІ РАДІАЦІЙНОЇ КРИХКОСТІ СТАЛЕЙ EI-852 ТА ЕП-450, ОПРОМІНЕНИХ ДО ДОЗ 10...100 дпа

О. О. ПАРХОМЕНКО, В. М. ВОСВОДІН, В. В. БРИК, Ю. Е. КУПРІЯНОВА,  
І. М. ЛАПТЄВ, Л. С. ОЖИГОВ, В. І. САВЧЕНКО

*Інститут фізики твердого тіла, матеріалознавства та технологій ННЦ ХФТІ НАН України*

Методом імітації впливу реакторного опромінення за допомогою прискорювачів заряджених частинок досліджено механізми радіаційної крихкості та мікроструктуру деформованих нержавних сталей: феритно-мартенситної ЕП-450 та феритної EI-852, опромінені до доз 10...100 дпа. Встановлено особливості розвитку в них процесів пластичної нестабільності та зародження тріщин. Порівняно отримані результати з одержаними для аустенітної сталі, опроміненої та деформованої у подібних умовах.

**Ключові слова:** *іонне опромінення, розпухання, мікроструктура, радіаційне окрихчення, пластичність, феритно-мартенситні сталі.*

Вважають, що феритно-мартенситні сталі – кандидатні матеріали для оболонок твелів та інших конструкційних елементів реакторів четвертого покоління, які повинні працювати за температур 300...600°C та високих доз опромінення (100...200 дпа). Їм властиві як позитивні (високий опір радіаційному розпухання), так і негативні (підвищена чутливість до радіаційної крихкості) властивості. Тому сьогодні їх дослідженню приділяють велику увагу [1–3].

До сталей, що використовують як матеріали конструктивних елементів активної зони реактора ВВЕР, висувають низку жорстких вимог, зокрема до корозійної тривкості у воді та парі в інтервалі 270...400°C за період від п'яти до 60 років, опору низькотемпературному радіаційному окрихченню й вакансійному розпухання за пошкоджувальних доз нейтронів від 5 до 100 дпа, міцності в інтервалі 270...400°C за час експлуатації.

Леговані (8...12%) хромисті сталі відносять до мартенситного або феритно-мартенситного класу, що залежить від їх хімічного складу та режиму термічної обробки. Основними структурними їх складниками, що визначають властивості, є мартенсит, структурно вільний ферит, карбіди  $M_{23}C_6$ ,  $M_7C_3$ , NbC, VC тощо. Відомо, що міцність та жаростійкість сталі забезпечує мартенсит (після відповідного відпуску). Якщо в її структурі більш ніж 10...15% фериту, то жаростійкі властивості погіршуються, знижуються короткочасова і тривала пластичність, а також ударна в'язкість.

ННЦ ХФТІ має унікальні технічні можливості та досвід для пришвидшеної імітації радіаційної пошкоджуваності реакторних матеріалів пучками заряджених частинок [4, 5]. Саме такий метод і використовували, вивчаючи радіаційну тривкість сталей за великих доз опромінення.

Нижче визначено механізми радіаційного зміцнення та крихкості феритно-мартенситних сталей EI-852 та ЕП-450, опромінені до доз 10...100 дпа при 300°C (умови радіаційного та термічного навантаження матеріалів). Вибір дози опромінення обумовлений вимогами до рівнів радіаційного навантаження, що відповідають як роботі матеріалів першої стінки ТЯР, так і матеріалів перспективних ядерних реакторів.

*Контактна особа:* Ю. Е. КУПРІЯНОВА, e-mail: coopriyashka14@gmail.com

**Матеріали та методика.** Досліджували сталі ЕП-450 та ЕІ-852, хімічний склад яких наведено у таблиці. Щоб отримати структуру, необхідну для забезпечення роботи в радіаційних та термічних умовах, сталь ЕП-450 гартували при 1050°C (30 min) із подальшим відпалом при 720°C (1 h), а ЕІ-852 – при 1050°C (40 min) + 760°C (2 h). Вихідну структуру матеріалів вивчали за допомогою трансмісійної електронної мікроскопії (рис. 1 і 2). Мікроструктура сталі ЕП-450 (12Х12М1БФР) після термообробки – це дуплексний відпущений мартенсит (сорбіт) й ферит у співвідношенні 1:1. Розмір зерен 16...20 μm. На межах зерен ферит–ферит та ферит–сорбіт виявили глобулярні карбіди типу  $M_{23}C_6$ , які заповнювали їх більш ніж на 80% (рис. 1а).

**Хімічний склад (mass.%) сталей ЕІ-852 та ЕП-450**

Сталь	С	Мn	Si	Cr	Ni	Mo	Nb	V	P
ЕП-450	0,13	0,32	0,18	13,1	0,2	1,35	1,45	0,28	0,021
ЕІ-852	0,13	0,51	1,87	12,7	0,2	1,45	–	–	0,013

Сталь ЕІ-852 (13С13С2М2Ш) за ТУ 14-1-1992-76 розроблена для виготовлення деталей активної зони атомних реакторів зі свинцево-вісмутовим теплоносієм. Вихідна її мікроструктура після термічної обробки феритна. Розмір зерна 30 μm. Зафіксували виділення типу  $M_2(C, N)$ ,  $M_{23}C_6$ ,  $M_2X$ , розташовані переважно на межах зерен та інших поверхнях поділу (рис. 1б).

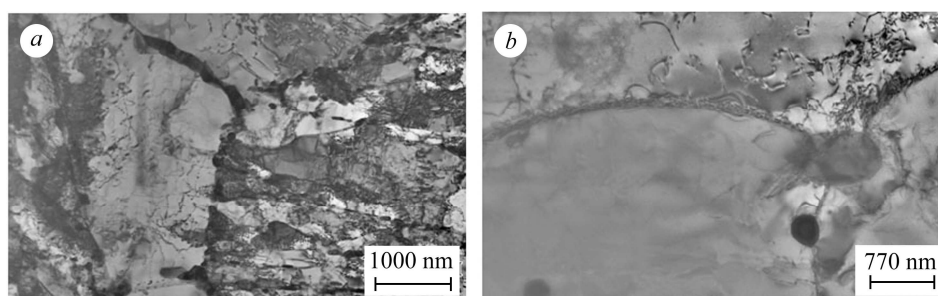


Рис. 1. Вихідна мікроструктура сталей ЕП-450 (а) та ЕІ-852 (б).

Fig. 1. Initial structure of EP-450 (a) and EI-852 (b) steels.

Щоб отримати інформацію про механізми радіаційної крихкості, спеціально розроблені зразки з фольги для випробувань на розтяг розташовували безпосередньо на пристрої для опромінення, який знаходився у прискорювачі важких іонів ЕСУВІ. Цей метод вже застосовували для дослідження та прогнозування радіаційної крихкості аустенітної нержавної сталі 0X18Н10Т – матеріалу для внутрішньо-корпусних пристроїв реакторів ВВЕР України – за великих доз опромінення [6]. За ним можна також отримати інформацію про навантаження та деформацію ( $\sigma$ – $\epsilon$  крива) опромінених фольг. Опромінювали зразки на прискорювачі ЕСУВІ (ННЦ ХФТІ) іонами хрому Cr ( $E = 1,8$  MeV, швидкість утворення пошкоджень  $k = 7 \cdot 10^{-3}$  dpa/s) до доз 10 та 100 dpa при температурі  $T_{irr} = 300^\circ\text{C}$ .

**Механічні тести сталей ЕІ-852 та ЕП-450 у температурному інтервалі максимального окрихчення.** Для визначення інтервалів максимального окрихчення сталей зразки випробовували при 20...600°C. Швидкість розтягування 2 mm/min, що відповідає  $3 \cdot 10^{-3}$  s<sup>-1</sup>. За температур вище кімнатної випробовували у вакуумі. Геометрія плоских зразків відповідала стандарту ASTM SS-3.

**Сталь ЕІ-852.** Побудували (рис. 2–4) температурні залежності границь текучості, рівномірного та загального видовження, а також коефіцієнта деформації.

ційного зміцнення сталей. За термоактиваційним підходом розділили внесок термоактивованої ( $\sigma^*$ ) та атермічної ( $\sigma_{\mu}$ ) компонент межі зсуву. Не дивлячись на різницю у структурі матеріалів, загальний вигляд цих залежностей збігається. Зафіксували три області: дві термоактивованої деформації – нижче приблизно 150 і вище 400°C, та атермічну – у діапазоні 180...400°C. Згідно зі встановленою раніше закономірністю [8], мінімум пластичності відповідає атермічній ділянці температурної залежності границі текучості.

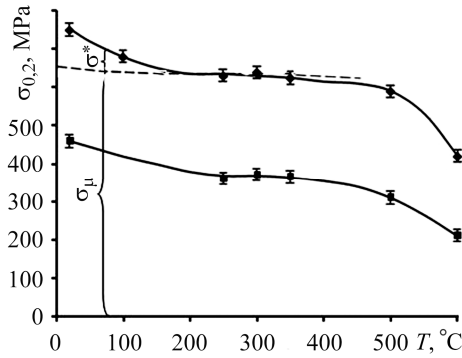


Рис. 2. Температурні залежності границь текучості сталей ЕП-450 (♦) та ЕІ-852 (■): штрихова лінія – нахил температурної залежності модуля текучості, визначеного методом високочастотного внутрішнього тертя.

Fig. 2. Temperature dependence of the yield stress in ЕП-450 (♦) and ЕІ-852 (■) steels: dotted line indicates the slope of the yield modulus determined by high-frequency internal friction.

Тому маємо дві області зростання відносного видовження. Мінімум пластичності сталі ЕІ-852 знаходиться в інтервалі 250...350°C, що відповідає атермічній пластичній деформації. На відміну від загального рівномірне видовження монотонно знижується за всіх температур випробувань (рис. 3а). Результати, подані на рис. 4а, пояснюють причину різкої різниці значень загального та рівномірного видовження внаслідок суттєвої локалізації деформації у “шийці”.

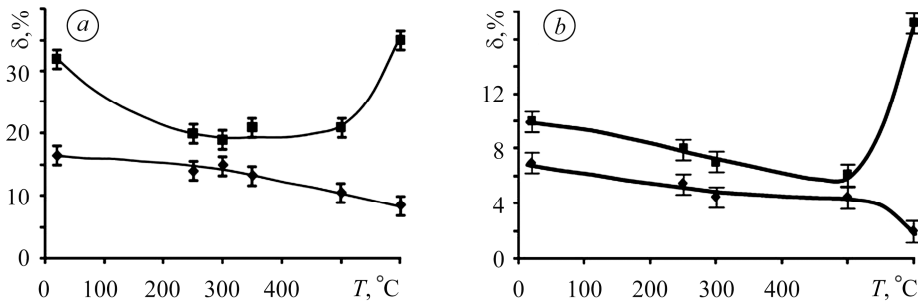


Рис. 3. Температурні залежності параметрів пластичності сталей ЕІ-852 (а) та ЕП-450 (б): ♦ – рівномірне видовження; ■ – загальне.

Fig. 3. Temperature dependence of plasticity parameters of ЕІ-852 (а) and ЕП-450 (б) steels: ♦ – uniform elongation; ■ – total elongation.

**Сталь ЕП-450.** Температурні залежності її пластичності та деформаційного зміцнення подано на рис. 3б і 4б. Принципової відмінності у її поведінці порівняно зі сталлю ЕІ-852 не виявили, за винятком відсутності мінімуму видовження при 200...400°C. Це пояснюють різною структурою та існуванням потужних і термічно стабільних напружень, що діють далеко від меж рейкового мартенситу, дисперсійних виділень та інших перешкод, що блокують рух дислокацій.

**Розвиток пластичної деформації та мікромеханізмів руйнування опромінених феритно-мартенситних сталей. Аналіз їх властивостей у температурному інтервалі максимальної крихкості.** Електронно-мікроскопічні дослідження зразків деформованої сталі ЕІ-852 (рис. 5) виявили “довгі” гвинтові дислокації із вектором Бюргера типу  $\langle 111 \rangle$ . Саме ці дислокації, що є ознакою меха-

нізму Пайрлса, зафіксовані у структурі деформованої за тих самих умов мартенситної сталі F82H [9] та типові [10] для всіх феритних Fe–Cr сталей. Довжина їх вільних сегментів подекуди перевищує 300 nm, а внаслідок взаємодії формується комірчаста структура (рис. 5).

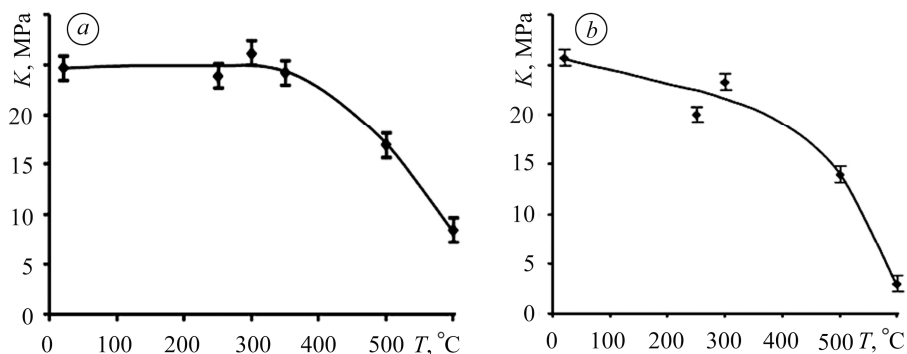


Рис. 4. Температурна залежність коефіцієнта деформаційного зміцнення сталей EI-852 (a) та EI-450 (b).

Fig. 4. Temperature dependence of EI-852 (a) and EI-450 (b) steels deformation hardening coefficient.

Рис. 5. Стадія формування ямкової структури у деформованій сталі EI-852 ( $T = 300^\circ\text{C}$ , деформація 8%). Розтяг у напрямку  $\langle 100 \rangle$ .

Fig. 5. Formation of dislocation cell structure in EI-852 steel ( $T = 300^\circ\text{C}$ , deformation 8%). Tension in direction  $\langle 100 \rangle$ .

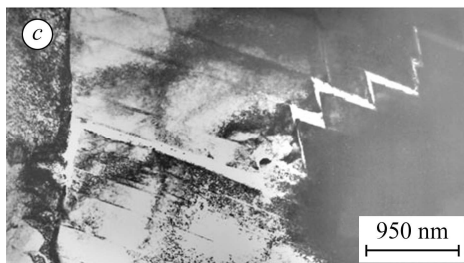
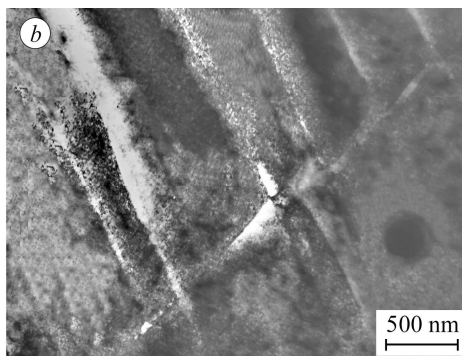
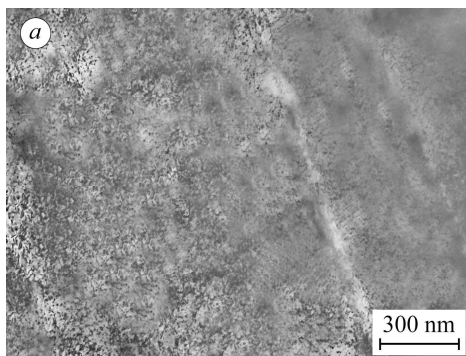
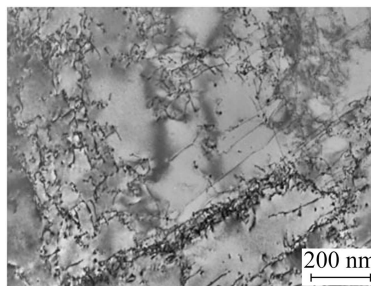


Рис. 6. Структура опромінених (10 dpa,  $300^\circ\text{C}$ ) після деформації ( $300^\circ\text{C}$ ,  $\epsilon = 8\%$ ) сталей EI-852 (a), EI-450 (b) та X18H10T (c).

Fig. 6. Structure of irradiated (10 dpa,  $300^\circ\text{C}$ ) EI-852 (a), EI-450 (b) and X18H10T (c) steels after deformation ( $300^\circ\text{C}$ ,  $\epsilon = 8\%$ ).

Отже, враховуючи результати термоактиваційного аналізу (які показали, що термоактиваційний об'єм становить  $\sim 20b^3$ ) та структурних досліджень, можна

вважати, що термоактивований рух гвинтових дислокацій контролює механізм Пайрлса. Після опромінення до дози 10 dpa (при 300°C) структура сталі містить дислокаційну сітку (густина дислокацій не менш ніж  $7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ), яку спричинили ріст та еволюція дислокаційних петель, залишкову кількість самих петель та багато радіаційних виділень вторинних фаз розміром 5...6 nm (рис. 6). Після деформації майже увесь її об'єм з високою концентрацією дислокаційних петель залишився недеформованим та без радіаційних дефектів, а вся деформація локалізована у вигляді каналів, що пронизують об'єм зерна. Локалізація деформації безпосередньо відповідає за зниження коефіцієнта деформаційного зміцнення сталі та за розвиток передчасного руйнування, тобто радіаційного окрихнення. Саме таку ситуацію ілюструє рис. 6, де мікромеханізм зародження тріщин – це перетинання дислокаційних каналів, або їх взаємодія із поверхнями поділу у матеріалі.

Із підвищенням дози опромінення до 100 dpa густина дислокацій дещо зменшилась, але у структурі сталі EI-852 з'явилися пори зі середнім розміром 3,3 nm та концентрацією  $8,2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Їх розпухання, як і сталі ЕП-450, опроміненої у тих самих умовах, не перевищувало 0,2%, що узгоджується з відомими результатами [11]. Під час деформування сталей за доз 100 dpa також утворюються дислокаційні канали шириною 20...25 nm, в яких зафіксували зсув та руйнування цих пор внаслідок їх взаємодії з рухливими дислокаціями (рис. 7a, b).

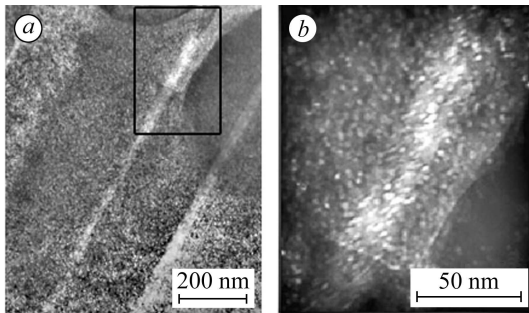


Рис. 7. Дислокаційні канали у деформованій після опромінення сталі EI-852 (100 dpa, 300°C), в яких відбуваються зсув та руйнування радіаційних пор.

Fig. 7. Dislocation channels, where the process of shear and fracture of radiation voids occurs in EI-852 steel after irradiation (100 dpa, 300°C).

Розрахунок деформації у каналах за зміною форми пор внаслідок їх взаємодії із дислокаціями дає середнє значення приблизно 350%, що сумірно з відомими даними [8]. На рис. 8 наведено схему розривання та зсуву пор рухливими дислокаціями, які призводять до зміни їх форми.

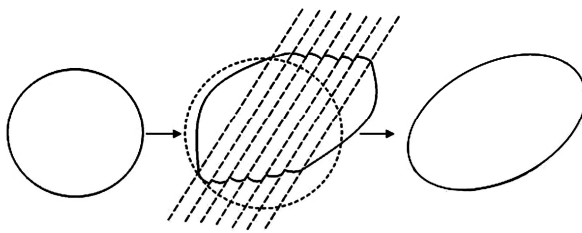


Рис. 8. Схема формозміни (видовження) пор за пластичної деформації опроміненого матеріалу.

Fig. 8. A chart of void formation (elongation) under creep in the irradiated material.

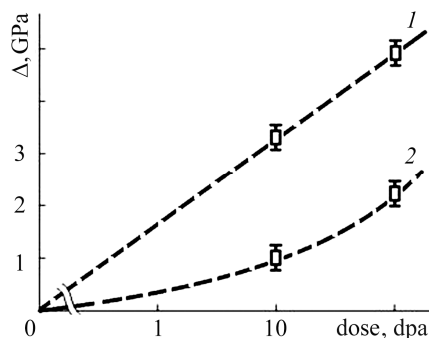
Під час деформації опромінених сталей виявили, що незалежно від інтервалу температур її протікання (в атермічному чи термоактивованому, за мінімуму або максимуму пластичності) розвиваються процеси пластичної нестабільності через локалізацію пластичної деформації у вузьких (20...25 nm) каналах. Тут дислокаційні петлі та пори руйнуються і об'єм каналів від них очищається. Водночас практично увесь матеріал залишається недеформованим.

**Радіаційне зміцнення сталей.** Опромінення важкими іонами призводить до значного росту міцності матеріалу, яку вимірювали наноіндентуванням за методом Олівера–Фара [12]. Більше радіаційне зміцнення сталі EI-852 (рис. 9, крива 1) пояснюють формуванням рівномірнішої, гомогеннішої, з низькою щільністю

дислокацій однофазної структури у вихідному стані. Тоді як сталь ЕП-450 містить двофазну смугасту структуру, яка вже у вихідному стані суттєво зміцнює матеріал (рис. 9). Велика щільність радіаційних пор за дози опромінення 10 дпа обумовлює подальше (порівняно із дозою 10 дпа) підвищення радіаційного зміцнення матеріалу [13].

Рис. 9. Зміна нанотвердості (радіаційного зміцнення) сталей після опромінення на прискорювачі ЕСУВІ:  
1 – сталь EI-852; 2 – ЕП-450.

Fig. 9. Variation of steels nano-hardness (radiation hardening) under irradiation on accelerator ЕСУВІ:  
1 – EI-852 steel; 2 – EP-450.



Таким чином, якщо за доз понад декілька десятків дпа вихідна щільність дислокацій не змінює структуру сталей, то смугасті межі поділу, характерні для двофазних сталей, впливають на неї за доз принаймні 100 дпа. Отримані для сталі ЕП-450 результати радіаційного зміцнення (рис. 9, крива 2) збігаються з такими ж для мартенситної типу F82H [14], виміряними наноіндентором, та якісно – з даними порівняльного аналізу її радіаційної крихкості та сталі EI-852 після нейтронного опромінення [15].

Порівнюючи властивості опромінених сталей із різним типом кристалічної ґратки у температурному інтервалі максимальної крихкості, виявили добру відповідність не тільки рівня їх розпухання за реакторного та іонного опромінення, але й результатів структурних досліджень аустенітної сталі 0X18H10T, опроміненої за тих самих умов. В обох випадках маємо однаковий мікромеханізм радіаційної крихкості, тобто пластична деформація локалізується у вигляді дислокаційних каналів та зародків тріщин у місцях їх перетинання.

### ВИСНОВКИ

Подано результати комплексних досліджень структурно-фазових характеристик, механічних властивостей, мікромеханізмів деформації та руйнування сталей EI-852 та ЕП-450 як у вихідному стані, так і після опромінення. Механічні їх характеристики досліджено в інтервалі 20...600°C. Встановлено температурний діапазон, який відповідає мінімуму пластичності, а також температурні інтервали атермічної та термоактивованої деформації сталей. При 20...130°C активаційний об'єм  $V$  становив  $\sim 20b^3$ , що відповідає руху гвинтових дислокацій у рельєфі Пайерлса ОЦК-кристалічної решітки фериту. Мінімум пластичності сталей відповідає атермічному механізму руху дислокацій. Виявлено, що під час деформування опромінених (10 та 100 дпа) сталей незалежно від інтервалу температур розвиваються процеси пластичної нестабільності через локалізацію пластичної деформації у вузьких (20...25 nm) каналах. Саме локалізація деформації безпосередньо відповідає за зниження коефіцієнта деформаційного зміцнення опроміненої сталі та розвиток передчасного руйнування – тобто радіаційного окрихчення. Встановлено, що смугові межі поділу, характерні для сталей типу ЕП-450, впливають на структурну еволюцію та радіаційне зміцнення до доз принаймні 100 дпа. Зіставлення отриманих результатів з одержаними для сталі типу X18H10T, опроміненої за тих самих умов, засвідчило, що в обох випадках мікромеханізм радіаційної крихкості однаковий і проявляється в локалізації пластичної деформації у вигляді дислокаційних каналів та зародків тріщин у місцях їх перетинання між собою або із внутрішніми поверхнями поділу.

*РЕЗЮМЕ.* С помощью методов имитации влияния реакторного облучения с использованием ускорителя заряженных частиц исследованы механизмы радиационной хрупкости, а также микроструктура деформированных нержавеющей сталей: ферритно-мартенситной ЕП-450 и ферритной ЕИ-852, облученных до доз 10...100 дпа. Определены особенности развития в них процессов пластической неустойчивости и зарождения трещин. Сравнены результаты исследования с полученными для аустенитной стали, облученной и деформированной в подобных условиях.

*SUMMARY.* The mechanisms of radiation brittleness and deformed stainless steels microstructure: ferritic-martensitic steel ЕП-450 and ferritic steel ЕИ-852, irradiated to doses of 10...100 dpa displacements per atom using the method of simulating the effect of reactor irradiation with application of charged particles accelerator were investigated. Specific features of the processes of plastic instability and cracks initiation in deformed irradiated steels were estimated. The results of investigation of austenitic and irradiated steels and of deformed steel under similar conditions were compared.

1. *Hardening* mechanisms of reduced activation ferritic/martensitic steels irradiated at 300°C / H. Tanigawa, R. L. Klueh, N. Hashimoto, M. A. Sokolov // J. Nucl. Mat. – 2009. – № 386–388. – P. 231–235.
2. *High dose, up to 80 dpa, mechanical properties of Eurofer 97* / Bob van der Schaaf, C. Petersen, Y. De Carlan, J.W. Rensman, E. Gaganidze, X. Averty // J. Nucl. Mat. – 2009. – № 386–388. – P. 236–240.
3. *Tong Z. and Dai Y.* Tensile properties of the ferritic martensitic steel F82H after irradiation in a spallation target // J. Nucl. Mat. – 2009. – № 385. – P. 258–262.
4. *Simulation* technologies in modern radiation material science / V. Voyevodin, V. V. Bryk, A. S. Kalchenko, I. M. Neklyudov, G. D. Tolstolutskaaya // Питання атомної науки і техніки. – 2014. – № 2 (90). – P. 180–186.
5. *Устройство* для моделирования эффектов взаимодействия нейтронных потоков с материалами ядерных реакторов / А. В. Пермяков, В. В. Мельниченко, В. В. Брык, В. Н. Воеводин, Ю. Э. Куприянова // Питання атомної науки і техніки. – 2014. – № 4 (92). – P. 3–22.
6. *Swelling* and post-irradiation deformation / O. V. Borodin, V. V. Bryk, A. S. Kalchenko, I. M. Neklyudov, A. A. Parkhomenko, V. N. Voyevodin // J. Nucl. Mat. – 2004. – № 329–333. – P. 630–633.
7. *Гордиенко Л. К.* Релаксационные явления в металлах и сплавах. – М.: Металлургиздат, 1963. – 264 с.
8. *Relation* of the temperature intervals of radiation embrittlement with behavior of flow stress components / I. M. Neklyudov, L. S. Ozhigov, V. N. Voevodin, A. A. Parkhomenko // Proc. 10<sup>th</sup> Int. Conf. on Fusion Reactor Materials (14–19 October, 2001, Baden-Baden). – Germany, 2001. – P. 172–174.
9. *Schaublin R., Spatig P., and Victoria M.* Microstructure assessment of the low activation ferritic/martensitic steel F82H // J. Nucl. Mat. – 1998. – № 258–263. – P. 1178–1184.
10. *Low fluency neutron irradiation response of ferritic stainless steels* / A. Kohyama, K. Asakura, Y. Kohno, K. Komamura, K. Suziki, M. Kiritani, T. Fujita, N. Igata // J. Nucl. Mat. – 1985. – № 133–134. – P. 628–631.
11. *Hamilton M. L., Gelles D. S., and Gardner P. L.* Postirradiation deformation behavior in ferritic Fe–Cr alloys // Effects Radiation on Materials: 16<sup>th</sup> Int. Symp. – Philadelphia, 1993. – P. 545–557. – (ASTM STP 1175).
12. *Influence* of operation conditions on structure and properties of 12% Cr steels as candidate structural materials for fusion reactor / A. G. Ioltukhovskiy, M. V. Leontyeva-Smirnova, Y. I. Kazennov, E. A. Medvedeva, A. V. Tselishchev, V. K. Shamardin, A. V. Povstyanko, S. E. Ostrovskiy, A. M. Dvoryashin, S. I. Porollo, A. N. Vorobyev, V. S. Khabarov // J. Nucl. Mat. – 1998. – № 258–263. – P. 1312–1318.
13. *Oliver W. E. and Pharr G. M.* An improved technique for determined hardness and elastic modulus // J. Mater. Res. – 1992. – № 7. – P. 1564–1573.
14. *Lucas G. E.* The evolution of mechanical property change in irradiated austenitic stainless steels // J. Nucl. Mat. – 1993. – № 206. – P. 287–305.
15. *Effect* of two-steps heat treatments on irradiation hardening in F82H irradiated at 573 K / M. Ando, H. Tanigawa, E. Wakai, R. E. Stoller // J. Nucl. Mat. – 2009. – № 386–388. – P. 315–318.

Одержано 30.03.2015