

ТРЕТИЙ РАЗДЕЛ

КОНСТРУКЦИОННЫЕ МАТЕРИАЛЫ РЕАКТОРОВ НОВЫХ ПОКОЛЕНИЙ, РЕАКТОРОВ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ И ТЕРМОЯДЕРНЫХ УСТАНОВОК

УДК 669.15:621.78:539.12.04:620.187.3

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ И ПОСТ-РАДИАЦИОННОЙ ТЕРМООБРАБОТКИ НА МИКРОСТРУКТУРУ И СВОЙСТВА СТАЛИ 12X18Н9Т, ОБЛУЧЕННОЙ В ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОМ РЕАКТОРЕ ВВР-К ДО 5 СНА

К.В. Цай, О.П. Максимкин, Л.Г. Турубарова

Институт ядерной физики НЯЦ РК, г. Алматы, Республика Казахстан;

E-mail: maksimkin@inp.kz, факс: +7(3272) 26-26-39

Методом просвечивающей электронной микроскопии исследованы изменения микроструктуры аустенитной стали 12X18Н9Т, облученной в активной зоне исследовательского реактора ВВР-К до повреждающей дозы 5 сна и подвергнутой пост-радиационным изохронным отжигам в интервале температур 450...950 °С. После облучения в микроструктуре наблюдалась развитая пространственная сетка междузельных петель Франка, сегменты которой гомогенно заполнены мелкими дефектами типа “black spots”. Характеризация дефектной микроструктуры и измерение микротвердости стали после облучения, а также после проведения изохронных отжигов позволили исследовать корреляционную связь между радиационным упрочнением и эволюцией дефектов структуры.

ВВЕДЕНИЕ

Известно, что условия нейтронного облучения (повреждающая доза, скорость ее набора, температура среды) оказывают существенное влияние на характер изменений микроструктуры и свойств облученного материала. К настоящему времени накоплен значительный объем экспериментальных данных по характеристике состояния аустенитных сталей, длительное время облучавшихся в условиях высоких скоростей набора повреждающей дозы и температур облучения, превышающих 350 °С (в случае быстрых реакторов) [1-3] и близких к 300 °С (в случае реакторов LWR-типа) [4-5]. В то же время информации по изменению состояния материалов в условиях длительного облучения при низких температурах и скоростях радиационного повреждения пока недостаточно. Заполнить недостаток экспериментальных данных может изучение материалов заменяемых конструкций исследовательских реакторов, в которых интенсивность облучения и температура среды существенно ниже.

В настоящей работе проведено исследование аустенитной нержавеющей стали 12X18Н9Т (Советский аналог AISI 304 SS) – материала сердечника стержня тонкого автоматического регулирования (АР), облученного в активной зоне реактора ВВР-К до 5 сна. Отличительными особенностями исследуемого облученного материала являются низкие значения температуры облучения (≤ 80 °С) и скорости набора повреждающей дозы ($1.2 \cdot 10^{-8}$ сна/с). За-

метим, что изучаемая в работе аустенитная сталь обычно не использовалась в качестве материала регулирующих стержней или оболочек сборок реакторов с водяным охлаждением в отличие, например, от алюминиевых сплавов, но зато широко применялась в качестве материала деталей и узлов активных зон быстрых реакторов в бывшем Советском Союзе.

Известно, что температура облучения металлических материалов во многом определяет тип микроструктуры наблюдаемых радиационных дефектов. Анализ большого количества накопленных экспериментальных данных по аустенитным сталям, температуры облучения которых изменялись в широком интервале значений от 50 до 700 °С [1-2], позволил выделить 2 режима облучения, приводящих к образованию принципиально различных дефектных микроструктур. Это высокотемпературный режим (от 300...700 °С), где для материала характерны образование вакансионных пор, радиационно-стимулированных вторичных выделений, дислокационных петель и сетки дислокаций и низкотемпературный режим (≤ 300 °С), при котором в материале доминируют мелкие дефекты типа “black spots” и дислокационные петли Франка, но нет вакансионных пор и заметного количества вторичных выделений. Таким образом, в условиях низкой температуры облучения в стали 12X18Н9Т можно было ожидать наличие в микроструктуре петель Франка и

мелких дефектов типа black spots. При этом предполагалось, что значительная плотность мелких дефектов, особенно вакансионной природы, могла находиться в материале после облучения, но быть недоступной к прямому наблюдению методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ).

В работе проводилась серия пост-радиационных изохронных отжигов (1 ч) облученной стали в интервале температур 450...950 °С и исследовалось влияние температуры на состояние дефектной микроструктуры и связанных с ней механических свойств (микротвердость). При этом был сделан акцент на возможности использования пост-радиационного отжига для уточнения качественной картины радиационного повреждения и количественной оценки видимых и части первоначально скрытых от прямого наблюдения радиационных дефектов.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Объектом исследования в работе являлся сердечник стержня АР (рис. 1), выполненный из аустенитной стали 12Х18Н9Т, химический состав которой в состоянии поставки приведен в табл. 1.

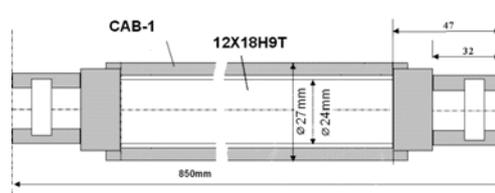


Рис. 1. Схематическое изображение стержня АР

Стержень облучался в активной зоне реактора ВВР-К при температуре не более 80 °С и скорости набора дозы $\sim 1.2 \times 10^{-8}$ сна/с в течение длительного времени (около 20 лет). При этом повреждающая доза, рассчитанная в соответствии с NRT стандартом, составила ~ 5 сна. Нижний конец стального сердечника стержня АР был облучен высоким флюенсом нейтронов $1.3 \cdot 10^{22}$ нейтр./см², тогда как верхний конец, находившийся за пределами активной зоны, облучился гораздо слабее.

Образцы для исследования готовили из материала нижнего сильно облученного конца стального сердечника. От него отрезали заготовку длиной 4 мм и диаметром 24 мм (диаметр стержня), которую затем разрезали на плоскопараллельные пластины с размерами 18×4×0.3 мм. Из пластин выбивали диски диаметром 3 мм – объекты для ПЭМ. Утонение ПЭМ-объектов проводили с помощью струйной электрополировки в электролите состава 20 мл HClO₄ + 70 мл C₂H₅OH + 70 мл C₃H₈O при температуре 16 °С.

Таблица 1

Химический состав аустенитной нержавеющей стали 12Х18Н9Т, вес. %

Fe	C	Cr	Ni	Ti	Si	Mn	S	P	Cu
Основа	0.12	17.0	9.5	0.6	0.34	1.6	0.01	0.02	0.2

Тонкую микроструктуру стали исследовали с помощью стандартных методик на просвечивающем электронном микроскопе JEM-100СХ при ускоряющем напряжении 100 кВ. Микротвердость поверхности стальных образцов после облучения и отжигов измеряли с помощью методики Виккерса на микротвердомере ПМТ-3 с нагрузкой на индентор 50 г при комнатной температуре. Для изучения термически-стимулированной эволюции дефектной микроструктуры проводилась серия 1-часовых изохронных отжигов в вакуумной печи СШВЛ-2 в интервале температур 450...950 °С с шагом 100 °С. При этом в ряде случаев осуществляли параллельное исследование состояния стальных образцов,

вырезанных вблизи оси стержня (центр: на расстоянии менее 2 мм от оси стержня) и на периферии (на расстоянии свыше 4 мм от оси стержня).

ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

ХАРАКТЕРИЗАЦИЯ МИКРОСТРУКТУРЫ СТАЛИ 12Х18Н9Т ПОСЛЕ ОБЛУЧЕНИЯ

Микроструктура зерен после облучения характеризовалась высокой концентрацией дислокационных петель и мелких дефектов типа “black spots”, дающих на изображении в темном поле контраст белых “точек” (рис. 2).

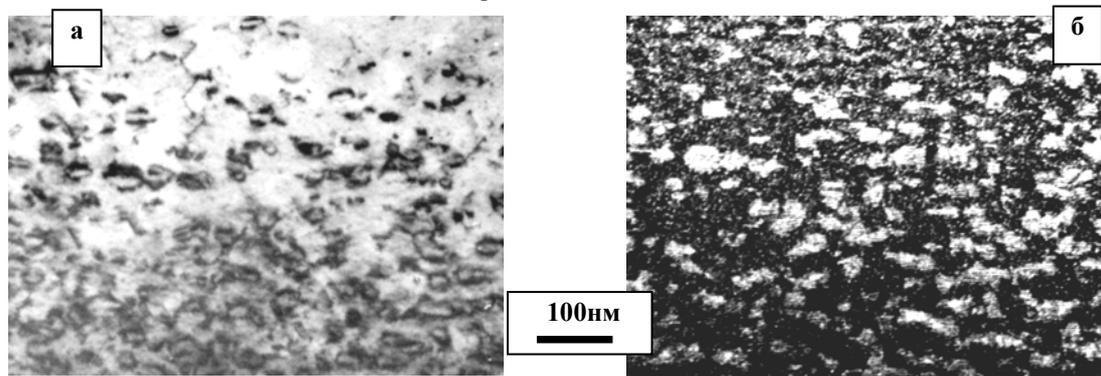


Рис. 2. ПЭМ-изображения в светлом поле (а) и в темном поле в рефлексе 002 (б) микроструктуры облученной нейтронами стали 12Х18Н9Т с одного и того же участка (низ стержня АР)

Можно предположить, как и в работе [5], что «black spot»-дефекты представляют собой смесь мелких петель Франка вакансионной и межузельной природы. Дислокационные петли, регистрируемые на ПЭМ-снимках, представляли собой межузельные петли Франка с вектором Бюргерса $a/3 \langle 111 \rangle$, имеющие внутренний дефект упаковки и залегающие в плоскостях типа $\{111\}$. Средняя плотность петель Франка составила $6.6 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$, их размеры менялись в достаточно широком интервале значений от 5 до 60 нм. При этом средний размер петель был равен ~ 23 нм, а максимальная доля приходилась на дефекты размером 15 нм.

Из ПЭМ-снимков хорошо видно, что большинство крупных петель оказалось выстроено в цепочки, формируя некое подобие лабиринтной сетчатой структуры. Сегменты лабиринтной сетки напоминают вытянутые вдоль направления 002 «квазичейки», ограничиваемые дислокационными петлями. Линейные размеры сегментов близки к 0.1 мкм, что примерно соответствует толщине просвечиваемого участка фольги. Внутри сегментов наблюдались однородно распределенные мелкие дефекты типа «black spots» (с размерами от 1 до 4 нм), плотность которых составляла не менее $1.4 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$, а средний размер ~ 2.7 нм.

ИЗМЕНЕНИЕ МИКРОСТРУКТУРЫ ОБЛУЧЕННОЙ СТАЛИ 12X18H9T В РЕЗУЛЬТАТЕ ИЗОХРОННЫХ ОТЖИГОВ В ИНТЕРВАЛЕ ТЕМПЕРАТУР 450...950 °С

ПЭМ-исследования облученной нейтронами стали 12X18H9T после проведения изохронных отжигов (1 ч) в интервале температур 450...950 °С выявили несколько видов дефектов радиационной и термической природы: дислокационные петли, «black spot»-дефекты, мелкодисперсные вторичные выделения карбо-нитридов титана, а также немногочисленные гелиевые поры. Отдельные стадии температурной трансформации микроструктуры дислокационных петель и «black spot»-дефектов были проиллюстрированы с помощью ПЭМ-снимков (рис. 3-4). Полученные значения плотности дефектов и их размерные характеристики даны в табл. 2.

После часового отжига при 450 °С (см. рис. 3,б; 4,а) в микроструктуре наблюдалось возрастание плотности дислокационных петель в 2 раза, существенное сокращение доли крупных петель, исчезновение петель крупнее 50 нм, а также уменьшение среднего размера петель в 1.4 раза по сравнению с материалом до термообработки. При этом максимум распределения петель Франка сместился в область меньших размеров, а концентрация мелких «black spot»-дефектов уменьшилась более чем в 4 раза.

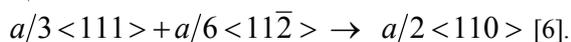
Таблица 2

**Структурные характеристики дислокационных петель и «black spot»-дефектов
в облученной и термообработанной стали 12X18H9T**

Температура отжига (1 ч)	Дислокационные петли			Мелкие дефекты типа «black spots»	
	Плотность, м^{-3}	Средний размер, нм	Диапазон размеров, нм	Плотность, м^{-3}	Средний размер, нм
Без отжига	$6.6 \cdot 10^{21}$	23.0	5...60	$1.4 \cdot 10^{23}$	2.7
450 °С	$1.3 \cdot 10^{22}$	16.7	5...50	$3.1 \cdot 10^{22}$	2.7
550 °С	$1.2 \cdot 10^{22}$	17.2	5...50	$1.2 \cdot 10^{22}$	2.8
650 °С	$5.7 \cdot 10^{21}$	29.0	10...90	-	-
750 °С	$6.3 \cdot 10^{20}$	42.8	15...100		
800 °С	$3.9 \cdot 10^{20}$	55.6	25...90		
850 °С	Наблюдались эпизодически		30...120		

После часового отжига при 550 °С (см. рис. 3,в) микроструктура дефектов состояла из конгломерата петель Франка с внутренним дефектом упаковки, полных петель и «black spot»-дефектов, гомогенно распределенных в пространстве между петлями. Плотность петель незначительно уменьшилась по сравнению с отжигом при 450 °С, а их средний размер несколько возрос.

Образование полных петель с вектором Бюргерса $a/2 \langle 110 \rangle$ происходит при взаимодействии петель Франка с дислокациями Шокли по дислокационной реакции



На ПЭМ-изображениях в темном поле в рефлексе 002 одновременно видны петли Франка с дефектом упаковки и полные петли, лишенные дефекта упаков-

ки (см. рис. 4,б). При этом количество полных петель в матрице составляло до 40% от всего содержания петлевых дефектов. В нашем случае потеря дефекта упаковки петлями Франка в процессе их роста имела место в результате пост-радиационной термообработки, тогда как аналогичный результат может происходить под облучением [7, 8].

После часового отжига при 650 °С (см. рис. 3,г) в материале наблюдались дислокационные петли, но уже не было «black spot»-дефектов. В микроструктуре еще сохранялись остаточные петли Франка (~8% от общего содержания петель) (см. рис. 4,в). Средняя концентрация дислокационных петель уменьшилась в 2 раза по сравнению с отжигом при 550 °С, а их средний размер вырос в 1.7 раза. Появились отдельные крупные дефекты размером до 90 нм.

ПЭМ-исследования стали, проведенные после отжига при 750 °С (см. рис. 3,д), показали, что средний размер дислокационных петель увеличился в 1.5 раза, а плотность уменьшилась более чем на порядок по сравнению с материалом до отжига. Сетка петель в этом случае уже не просматривалась. В результате взаимодействия растущих петель в материале появились дислокационные скопления, плотность которых по мере исчезновения из микроструктуры петель росла. Микроструктура стали по-

сле отжига при 800 °С (см. рис. 3,е) не претерпела существенных изменений по сравнению с отжигом при 750 °С. После отжига при 850 °С в зернах периферийной (относительно оси стержня) области наблюдалась только сетка дислокаций (см. рис. 3,ж). Петли эпизодически встречались в материале вблизи оси стержня (см. рис. 3,з). При этом размеры некоторых дислокационных петель достигали 120 нм. При более высоких температурах отжига дислокационные петли выявлены не были.

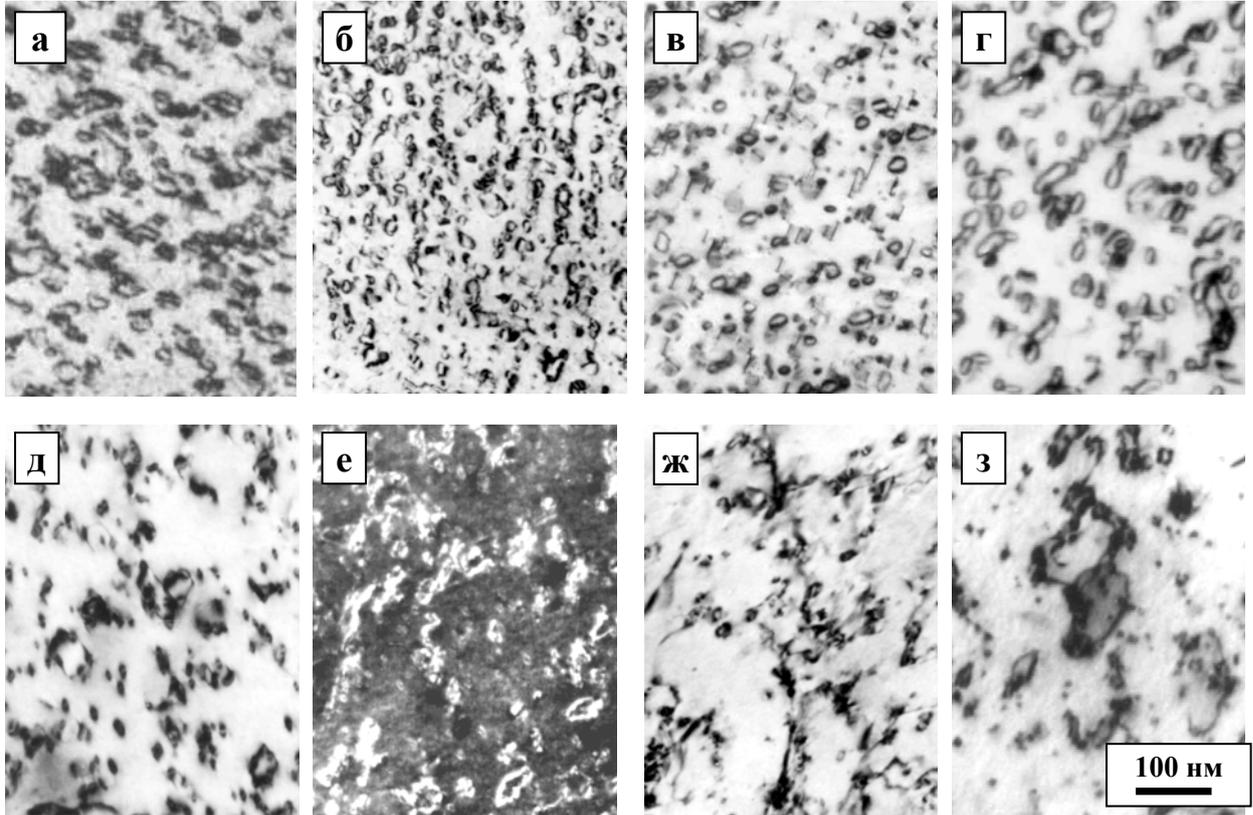


Рис. 3. Эволюция дислокационных петель в облученной нейтронами стали 12X18H9T в результате пост-радиационных отжигов (1 ч) при различных температурах: а – без отжига; б – 450 °С; в – 550 °С; г – 650 °С; д – 750 °С; е – 800 °С; ж – 850 °С (периферия); з – 850 °С (центр)

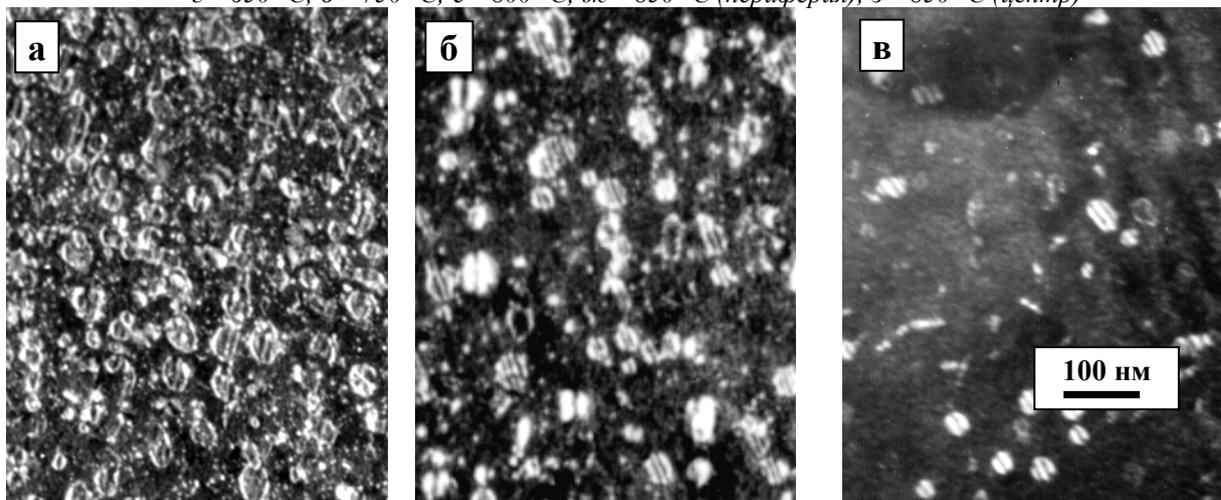


Рис. 4. Отжиг «black spot»-дефектов и внутреннего дефекта упаковки в дислокационных петлях. Темнопольные ПЭМ-изображения получены в слабом пучке (вблизи рефлекса 002) после отжигов при 450 °С (а), 550 °С (б) и в рефлексе 111 после отжига при 650 °С (в)

ТЕРМИЧЕСКИ-ИНДУЦИРОВАННЫЕ

ВТОРИЧНЫЕ ВЫДЕЛЕНИЯ

После отжига при 750 °С на дислокационных петлях и дислокациях в матрице наблюдалось образование множественных мелкодисперсных выделений вторичной фазы, дающих экстрарефлексы на

дифракционной картине (рис. 5). Выделения были полностью когерентны с матрицей и по контрасту на светлопольном изображении напоминали полные дислокационные петли.

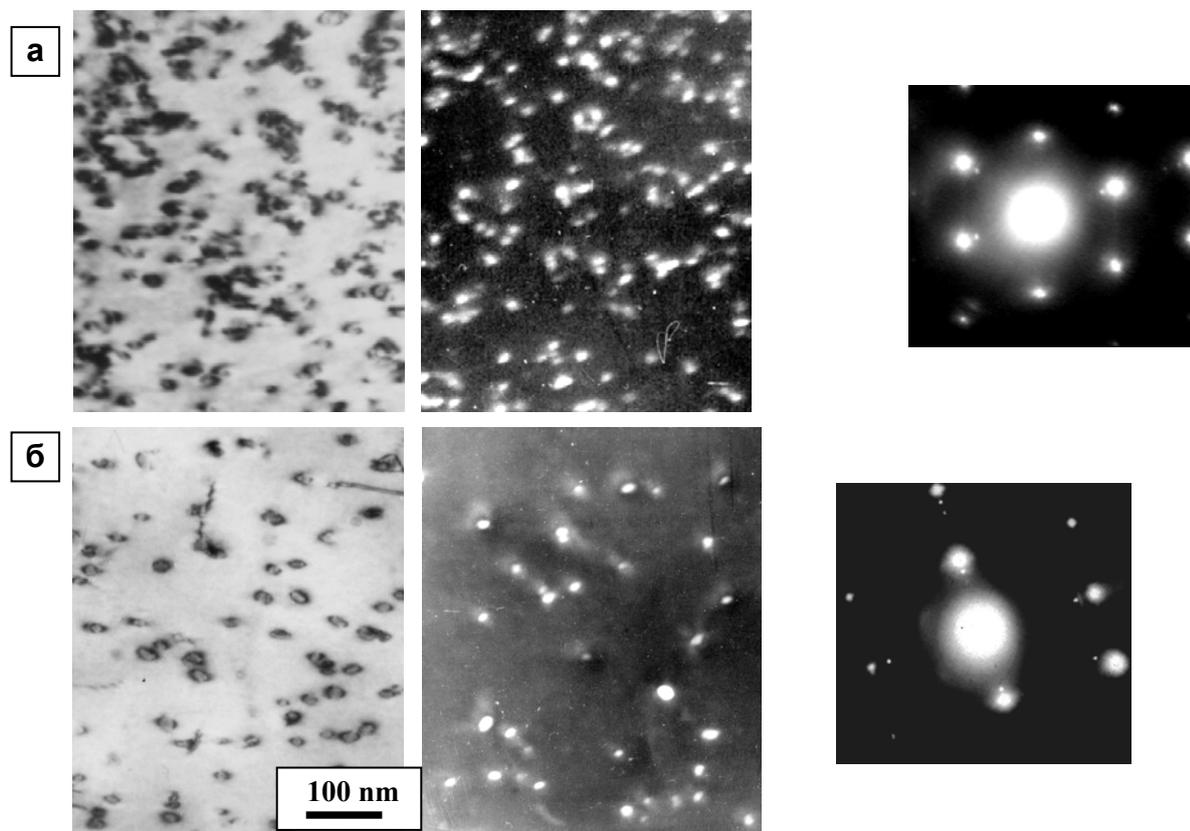


Рис. 5. ПЭМ-снимки мелкодисперсных выделений в светлом и темном поле с соответствующей картиной микродифракции: а – отжиг при 750 °С, ось зоны аустенитной матрицы $[110]_{\gamma}$; б – отжиг при 950 °С, ось зоны $[112]_{\gamma}$

Для идентификации выделений использовали данные по вторичным фазам, образующимся в аустенитных сталях в результате отжига и под облучением [9, 10] и значение параметра решетки аустенитной матрицы 0.359 нм, полученное методом рентгеновской дифрактометрии [11]. Выявленное подобие дифракционных картин от вторичных выделений и аустенитной матрицы при разных температурах изохронного отжига свидетельствовало о

параллельном сопряжении их кристаллических решеток, что характерно для эпитаксиально выращенных слоев второй фазы, постоянная решетки которой лишь слегка отличается от матричной. Рассчитанная величина параметра решетки вторичной фазы составила 0.420 нм, что наиболее отвечает соединениям титана TiN (ГЦК) $a = 0.424$ нм, TiC (ГЦК) $a = 0.42...0.433$ нм или карбонитридам титана Ti(C,N) [10].

Таблица 3

Характеристики вторичных мелкодисперсных выделений нитридов и карбидов титана (данные усреднены по центру и периферии относительно оси стержня)

Температура отжига, °С	Области с выделениями, %	Плотность, м ⁻³	Средний размер, нм	Диапазон размеров, нм
750	100	1.0×10^{22}	16.3	10...25
800	>95	6.7×10^{21}	14.3	10...25
850	85	5.8×10^{21}	13.5	10...40
950	55	3.2×10^{21}	15.8	10...35

Как видно из данных табл. 3, максимальная плотность мелкодисперсных выделений имела место после отжига при 750 °С, когда концентрация дислокационных петель межзельного типа существенно уменьшилась. С повышением температуры

отжига плотность вторичных выделений существенно упала, что может свидетельствовать в пользу доминирования процессов диффузионного растворения атомов примесей над их сегрегацией, поскольку уровень локальной пересыщенности твер-

дого раствора атомами углерода (азота) убывает. На части отжиговой диаграммы (750...850 °С) средний размер выделений незначительно уменьшился, а затем с повышением температуры (950 °С) начал расти. Последнее может быть обусловлено процессами коалесценции в результате термодиффузии атомов примеси от более мелких образований к более крупным. Замечено, что при увеличении среднего размера более чем в 2 раза частицы становились непрозрачными по сравнению с матрицей и утрачивали полную когерентность. При том часть частиц приобрела характерную строгую геометрическую форму (квадрат, ромб), которую в металлографии аустенитных сталей обычно связывают с нитридами титана. Часть же сохранила отсутствие четкой от-

ранки, что указывает на то, что среди металлоидных атомов в их составе преобладал углерод.

ГЕЛИЕВЫЕ ПОРЫ

ПЭМ-исследования показали, что, начиная с температуры изохронного отжига 800 °С и выше, на малодефектных участках образца появились поры, заполненные гелием. Они образовались преимущественно на дислокациях в матрице и на границах зерен. Основные характеристики гелиевых пор, рассчитанные из ПЭМ-снимков, приведены в табл. 4. С повышением температуры отжига средние размеры пор росли, а их плотность незначительно уменьшалась.

Таблица 4

Характеристики гелиевых пор (данные усреднены по центру и периферии)

Температура отжига, °С	Области с порами, %	Плотность, м ⁻³	Средний размер, нм	Диапазон размеров, нм
800		Наблюдались эпизодически		5...15
850	15	3.7·10 ²⁰	8.8	5...20
950	45	3.2·10 ²⁰	13.5	10...25

ИЗМЕНЕНИЕ ПРИРОСТА МИКРОТВЕРДОСТИ В ОБЛУЧЕННОЙ СТАЛИ 12Х18Н9Т ПОСЛЕ ИЗОХРОННЫХ ОТЖИГОВ

На рис. 6 приведены данные по микротвердости образцов облученной стали 12Х18Н9Т, вырезанных из центральной и периферийной областей поперечного сечения стального сердечника стержня АР, с ростом температуры изохронного отжига.

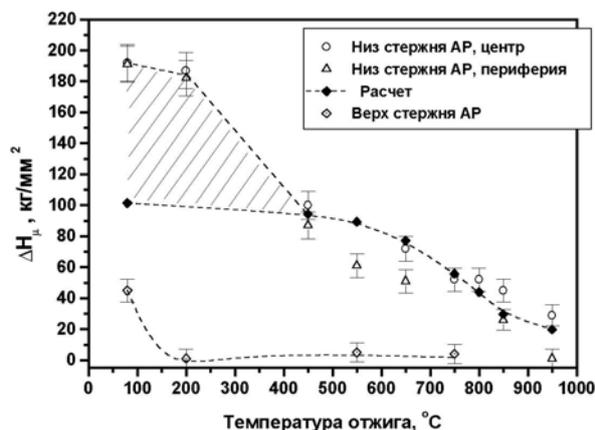


Рис. 6. Влияние температуры изохронного отжига на изменение микротвердости стали 12Х18Н9Т, облученной нейтронами до 5 сна

Видно, что радиационное упрочнение для образцов из центра несколько выше по сравнению с образцами, взятыми с периферии. При этом характер изменения микротвердости с ростом температуры отжига для материала центра и периферии один и тот же. Было показано, что микротвердость стали с нижнего конца стержня АР после облучения (390 кг/мм²) превышала микротвердость необлученной стали (199 кг/мм²) почти в два раза. Прирост микро-

твердости уменьшался с ростом температуры изохронного отжига вплоть до 950 °С, вблизи которой достигалось минимальное (нулевое) значение радиационного упрочнения. Обращает на себя внимание тот факт, что скорость отжига прироста микротвердости мала при невысоких температурах отжига (200 °С), тогда как после отжигов 450...650 °С она возрастала в несколько раз. При этом, как следует из предыдущего параграфа, в микроструктуре имела место сложная эволюция дефектов типа междоузельных петель и мелкогазовых дефектов типа «black spots».

На интервале температур отжигов 750...850 °С наблюдалось некоторое замедление уменьшения прироста микротвердости, обусловленное незначительным упрочнением за счет образования высокой плотности мелкодисперсных выделений вторичных нитридов и карбидов титана, полностью когерентных с матрицей. Что касается материала слабо облученного верхнего конца стержня, то прирост микротвердости после облучения был незначителен и полностью отжигался уже при температуре 200 °С.

КОРРЕЛЯЦИЯ ИЗМЕНЕНИЙ МИКРОТВЕРДОСТИ И МИКРОСТРУКТУРЫ ПРИ ОТЖИГЕ

Измерение микротвердости показало, что отжиг облученной стали при 450 °С, когда регистрируемая плотность «black spot»-дефектов уменьшилась более чем в 4 раза по сравнению с микроструктурой до отжига, привел к 50% падению прироста микротвердости, несмотря на общее увеличение плотности петель Франка почти в два раза. Отжиг при 650 °С, характеризующийся исчезновением из микроструктуры мелких дефектов и завершением превращения петель Франка в полные петли, в свою очередь, привел к уменьшению радиационного при-

роста микротвердости на 70%. Сопоставление с результатами микроструктурных исследований показало, что радиационное упрочнение стали связано в основном с тремя типами дефектов разных размерных категорий. Во-первых, это развитая пространственная сетка, образуемая дислокационными петлями Франка, стабильность которых повышается за счет примесных атомов, густо декорирующих дефекты упаковки внутри петель. Во-вторых, это «black spot»-дефекты межузельной и вакансионной природы, выявляемые на ПЭМ-снимках внутри сегментов сетки петель и, по-видимому, являющиеся петлями Франка очень мелких размеров. В третьих, это предполагаемое наличие в сегментах сетки высокой плотности простейших вакансионных кластеров (дивакансий и пр.), вообще не регистрируемых на ПЭМ-снимках. Смесь трех типов дефектных микроструктур способна создать достаточно напряженное состояние аустенитной матрицы, характеризующееся высоким значением прироста микротвердости.

В работе проведена оценка прироста микротвердости облученной и термообработанной стали 12X18H9T в рамках модели дисперсных барьеров [12]. При этом изменение предела текучести облученного материала за счет дискретных препятствий, затрудняющих движение дислокаций, представлялось в виде:

$$\Delta\sigma_y = M\alpha\mu b\sqrt{Nd}, \quad (1)$$

где M – фактор Тейлора; α – мера мощности барьера; μ – модуль сдвига матрицы; b – вектор Бюргера движущейся дислокации; N и d , соответственно, значения плотности и среднего размера дефектов. Величина, обратная \sqrt{Nd} , определяла средний объем препятствия. Вклады от барьеров разного сорта суммировались согласно формуле:

$$\Delta\sigma_{tot} = \sqrt{\sum_i (\Delta\sigma_{SR,i})^2}, \quad (2)$$

где $\Delta\sigma_{tot}$ – полное изменение предела текучести; $\Delta\sigma_{SR,i}$ – изменение за счет локального препятствия i -го сорта. Величины α , использованные при оценке прироста предела текучести для дефектов разного типа, были взяты из работы [12], $M=3$ и $b=2.5\cdot 10^{-10}$ м – из работы [3], μ полагалось равным $8.6\cdot 10^{10}$ Па. По аналогии с [13] для определения соотношения между приростом предела текучести облученной стали и изменением микротвердости по Виккерсу было использовано соотношение Хигги и Хаммада [14] $\Delta\sigma_y = 3.55\Delta H$, где ΔH измерялось в кг/мм^2 и $\Delta\sigma_y$ – в МПа.

Результаты расчета изменения прироста микротвердости ΔH облученной нейтронами стали 12X18H9T с ростом температуры изохронного отжига показаны на рис. 6 в сравнении с экспериментальными данными. Получено удовлетворительное согласование модели с экспериментом в области температур изохронных отжигов 450...950 °С. Тем

не менее имело место сильное расхождение расчета с измеренной величиной упрочнения на интервале от 80 (температура облучения) до 450 °С (заштрихованная область на графике). Оно было, по-видимому, обусловлено недоучетом радиационных дефектов мелких размеров. Согласно выводам [15], при низкой температуре облучения (~60 °С) в аустенитных материалах с большой вероятностью можно ожидать наличие высокой плотности вакансионных кластеров, содержащих 2-3 вакансии. Логично предположить, что именно высокое содержание вакансионных кластеров, которые нельзя выявить методом ПЭМ, является главной причиной расхождения расчета радиационного упрочнения с экспериментом при близкой к условиям [15] температуре ~80 °С. Простой расчет позволяет примерно оценить необходимую для компенсации расхождения с экспериментом плотность вакансионных кластеров. Если для них принять α равным 0.25 [12], то плотность неучтенных кластеров, содержащих, например, три вакансии, составит не менее $1.3\cdot 10^{24}\text{ м}^{-3}$. Это на порядок больше, чем содержание дефектов типа «black spots» (петель Франка) и на два порядка больше концентрации крупных петель Франка межузельного типа, наблюдаемой в материале после облучения.

Расчет вклада от термически-индуцированных вторичных выделений типа МС показал, что если брать α в диапазоне значений 0.33...0.45 [12], который отвечает выделению вторичных фаз непосредственно под облучением, то получим существенное и ничем не обоснованное увеличение ΔH при температурах отжига 750...800 °С. В нашем случае под облучением появления вторичных выделений не наблюдалось.

Выделения образовывались в результате пост-радиационного отжига в интервале температур 750...950 °С и лишь незначительно упрочняли аустенитную матрицу. Можно предположить, что мощность их в качестве дискретных препятствий на пути движущихся дислокаций реально была существенно меньше величины 0.33. При этом, по-видимому, главное различие состояло не в природе самих выделений, а в состоянии матрицы вокруг них, уровень внутренних напряжений в которой значительно снизился после отжига. В работе для расчета вклада в микротвердость от термически-индуцированных мелкодисперсных выделений нитридов и карбидов титана принималось значение $\alpha = 0.2$, которое дало хорошее согласование экспериментальных и расчетных данных.

Таким образом, проведенная оценка изменения микротвердости материала с ростом температуры пост-радиационного отжига продемонстрировала неплохое согласие теории и экспериментальных данных на интервале температур отжигов, после которых в микроструктуре уже не было скрытых радиационных дефектов. В то же время непосредственно после облучения и на интервале температур отжигов < 450 °С, когда в микроструктуре предположительно содержалась высокая плотность скрытых дефектов: «black spots» (мелких петель Франка)

и вакансионных комплексов, напротив, имело место сильное расхождение расчета с экспериментом. Сделанные выводы имеют хорошее качественное согласие с результатами обзоров [1-2, 5], где значительная часть прироста микротвердости после облучения также связывается с малоразмерными дефектами.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Maziasz. Overview of microstructural evolution in neutron-irradiated austenitic stainless steels // *Journal of Nuclear Materials*. 1993, v. 205, p. 118–145.
2. S.J. Zinkle, P. Masiasz, R.E. Stoller. Dose dependence of the microstructural evolution in neutron irradiated austenitic stainless steel // *Journal of Nuclear Materials*. 1993, v. 206, p. 266–286.
3. T.R. Allen, J.I. Cole, C.L. Trybus et al. The effect of dose rate on the response of austenitic stainless steels to neutron radiation // *Journal of Nuclear Materials*. 2006, v. 348, p. 148–164.
4. S.M. Bruemmer, E.P. Simonen, P.M. Scott et al. Radiation-induced material changes and susceptibility to intergranular failure of light-water-reactor core internals // *Journal of Nuclear Materials*. 1999, v. 274, p. 299–314.
5. D.J. Edwards, E.P. Simonen, S.M. Bruemmer. Evolution of fine-scale defects in stainless steels neutron-irradiated at 275 °C // *Journal of Nuclear Materials*. 2003, v. 317, p. 13–31.
6. D. Kuhlmann-Wilsdorf. On the origin of dislocations // *Philosophical Magazine*. 1958, v. 3, #26, p. 125–139.
7. Ю.В. Конобеев, С.И. Руднев. Оценка энергии дефекта упаковки петель Франка в нержавеющей аустенитной стали 0X16H15M3B // *Атомная энергия*. 1982, т. 53, в. 2, с. 107–108.
8. J.I. Cole, S.M. Bruemmer. Post-irradiation deformation characteristics of heavy-ion irradiated 304L SS // *Journal of Nuclear Materials*. 1995, v. 225, p. 53–58.
9. В.И. Воеводин, В.Ф. Зеленский, И.М. Неклюдов и др. Особенности микроструктурных изменений в аустенитных и ферритных нержавеющих сталях при облучении // *ФММ*. 1996, т. 81, № 3, с. 91–95.
10. T. Sourmail. Literature Review. Precipitation in creep resistant austenitic stainless steels // *Materials Science and Technology*. 2001, v. 17, #1, p. 1–14.
11. В.Д. Мелихов, П. Оразбаев. Рентгенографическое исследование реакторной стали 12X18H9T при отжиге // *Известия МОН РК, НАН РК. Сер. Физ.-мат.* 2003, № 6, с. 1–5.
12. G.E. Lucas. The evolution of mechanical property change in irradiated austenitic steels // *Journal of Nuclear Materials*. 1993, v. 206, p. 287–305.
13. J. Gan, D.J. Edwards, E.P. Simonen et al. Microstructural Evolution and Hardening in 300-Series Stainless Steels: Comparison between Neutron and Proton Irradiation // *Proc. of the Tenth Int. Symp. on Environmental Degradation of Materials*, NACE, Houston, TX, 2002.
14. H.R. Higgy, F.H. Hommad. Effect of fast-neutron irradiation on mechanical properties of stainless steels: AISI types 304, 316 and 347 // *Journal of Nuclear Materials*. 1975, v. 55, p. 177–186.
15. H. Fukushima, Y. Shimomura. Damage structure due to displacement cascades in 14 MeV neutron-irradiated metals studied by positron lifetime and TEM techniques // *Journal of Nuclear Materials*. 1993, v. 205, p. 59–67.

ВПЛИВ ОПРОМІНЕННЯ Й ПОСТ-РАДІАЦІЙНОЇ ТЕРМООБРОБКИ НА МІКРОСТРУКТУРУ Й ВЛАСТИВОСТІ СТАЛИ 12X18H9T, ОПРОМІНЕНОЇ У ДОСЛІДНИЦЬКОМУ РЕАКТОРІ ВВР-К ДО 5 СНА

К.В. Цай, О.П. Максимкин, Л.Г. Турубарова

Методом просвітчастої електронної мікроскопії досліджені зміни мікроструктури аустенітної сталі 12X18H9T, опроміненої в активній зоні дослідницького реактора ВВР-К до дози, що ушкоджує, 5 сна й піддамітій пост-радіаційним ізохронним отжигам в інтервалі температур 450...950 °С. Після опромінення в мікроструктурі спостерігалася розвинена просторова сітка междуузельних петель Франка, сегменти якої гомогенно заповнені дрібними дефектами типу «black spots». Характеризація дефектної мікроструктури й вимір микротвердості сталі після опромінення, а також після проведення ізохронних отжигів дозволили досліджувати кореляційний зв'язок між радіаційним зміцненням і еволюцією дефектів структури.

INFLUENCE OF IRRADIATION AND POST-IRRADIATION THERMAL TREATMENT ON MICROSTRUCTURE AND PROPERTIES OF 12CR18NI9TI STEEL, IRRADIATED TO 5 DPA IN THE WWR-K RESEARCH REACTOR

K.V. Tsai, O.P. Maksimkin, L.G. Turubarova

Transmission electron microscopy was used to examine microstructural changes in austenitic stainless steel 12Cr18Ni9Ti irradiated to 5 dpa in the WWR-K research reactor and subjected to post-irradiation isochronous annealings for 1h in the range of 450...950 °C. An advanced network of interstitial Frank loops, segments of which were filled homogeneously with fine-scale defects of black spot type was observed in the microstructure after irradiation. Characterization of microstructure and changes in microhardness after irradiation as well as after post-irradiation annealings allow to study the correlation between radiation hardening and the evolution of structural defects.