



III. Поведение имплантированных и трансмутированных газовых примесей в облученных металлах и сплавах

Механизмы развития газовой пористости в ОЦК и ГЦК материалах при послерадиационных отжигах и высокотемпературном внедрении гелия

С. Ю. Бинюкова, И. И. Чернов, Б. А. Калинин, Мью Хтет Вин
Московский инженерно-физический институт (государственный университет),
(binu@phm.mephi.ru)

Накопление и/или внедрение существенных концентраций гелия оказывает неблагоприятное влияние на радиационную повреждаемость конструкционных материалов ядерных и термоядерных реакторов. В связи с этим поведению гелия и формированию газовой пористости в различных материалах уделялось большое внимание.

Для изучения закономерностей формирования и механизмов роста пузырьков обычно используют эксперименты двух видов:

- облучение непосредственно при высокой температуре;
- послерадиационный изохронный отжиг образцов, облученных при низкой температуре.

В случае непрерывного внедрения газа при *высокой температуре* можно получить информацию об особенностях формирования пузырьков, но точно определить дозу, при которой они зарождаются, сложно, так как пузырьки достигают размеров и плотности, необходимых для экспериментального обнаружения, уже при более высоких дозах. *Во втором случае* информация о первоначальном состоянии гелий-вакансионных кластеров незначительна, и нельзя делать определенных выводов о процессе зарождения пузырьков. Однако по кинетике роста пузырьков можно получить информацию о механизмах их роста, миграции или диссоциации газа из пузырьков. Эксперименты показали, что в отношении дефектообразования эти условия развития микроструктуры неэквивалентны. Отличия полученных результатов в этих двух типах экспериментов обусловлены различными механизмами развития газовой пористости при послерадиационных отжигах и высокотемпературном облучении ионами гелия.

При использовании послерадиационных отжигов образцов, облученных при низкой температуре, основную роль в развитии пористости играют различные гелий-вакансионные комплексы, которые формируются при облучении, например комплексы типа He_mV_n , V_nC_k , I_nC_k , $\text{He}_m\text{C}_k\text{V}_n$ и $\text{He}_m\text{Me}_k\text{V}_n$ (He, C, Me, I и V – атомы гелия, углерода, элемента замещения, собственный атом и вакансия, соответственно) в зависимости от материала, причем в чистых металлах образуются только простые комплексы типа He_mV_n . Комплексы имеют различную энергию связи и, соответственно, при послерадиационном нагреве термически менее стойкие комплексы распадаются, а на

более стабильных комплексах формируются гелиевые пузырьки.

При высокотемпературном облучении роль гелий-вакансионных комплексов невелика, поскольку температура их распада зачастую ниже, чем температура облучения, кроме того, в условиях непрерывного поступления гелия на наиболее термически устойчивых из них начинают формироваться пузырьки на ранних стадиях облучения. Таким образом, регулирующими процессами развития пористости при высокотемпературном облучении являются диффузионные.

Кроме того, в обоих типах экспериментов существенное влияние на закономерности развития гелиевой пористости в ОЦК и ГЦК материалах оказывают различная энергетика точечных дефектов, неоднозначное влияние легирующих элементов на коэффициенты самодиффузии матрицы, а также исходное структурно-фазовое состояние материалов.

В работе приведены экспериментальные данные по развитию газовой пористости в ОЦК и ГЦК материалах после облучения ионами гелия с энергией 40 кэВ до дозы 5×10^{20} ион/м²:

- при температуре 650 и 750 °С;
- при комнатной температуре и послерадиационного отжига при 650 и 750 °С.

В работе исследованы модельные сплавы Ni-*X*, где *X* – элемент замещения, сплавов Ni-C и Fe-C, а также конструкционные ОЦК и ГЦК материалы.

В экспериментах по послерадиационному отжигу этих материалов показана роль гелий-вакансионных комплексов в формировании пористости, а также то, что более высокая энергия связи гелий-вакансионных комплексов в ОЦК материалах (различные ферритные и ферритно-мартенситные стали, Fe и сплавы Fe-C), чем в ГЦК материалах (разные аустенитные стали и сплавы, Ni, сплавы Ni-C и Ni-*X*), сдерживает формирование газовой пористости: в ГЦК материалах распад комплексов He_мV_п до 650 °С приводит к формированию крупной пористости и высокому газовому набуханию, а в ОЦК решетке гелий остается связанным в комплексах.

На примере тех же материалов показано, что при высокотемпературном облучении ионами гелия при тех же температурах в ОЦК материалах, наоборот, развиваются более крупные пузырьки, чем в ГЦК материалах. Быстрому росту пузырьков в ферритных материалах и их большому набуханию по сравнению с ГЦК материалами способствует более высокая подвижность атомов гелия и вакансий в ОЦК металлах. Кроме того, ускоренный рост пузырьков в ОЦК материалах возможен и вследствие их коалесценции, поскольку меньшая, чем в ГЦК материалах, энергия активации самодиффузии в ОЦК материалах способствует большей скорости миграции пузырьков.

Особенности взаимодействия тяжелых изотопов водорода со сталями аустенитного класса

Ю. Н. Долинский, Ю. Н. Зуев, И. А. Лясота, И. В. Сапрыкин

Российский Федеральный Ядерный Центр – Всероссийский Научно-исследовательский Институт Технической Физики им. акад. Е. И. Забабахина, г. Снежинск, Россия (dep5@vniitf.ru)

Методом водородопроницаемости исследовано проникновение дейтерия и трития через стали аустенитного класса SS316L, 12X18H10T и X16H15M3T1. Исследования проводились на установке РФЯЦ-ВНИИТФ, обеспечивающей измерение и запись диффузионных потоков изотопов водорода (ИВ) в зависимости от времени при фиксированных значениях температуры образца и давления газа.

В результате обработки кинетических кривых потока ИВ были определены температурные зависимости проницаемости сталей и, используя метод Дайнеса [1], эффективные значения коэффициентов диффузии в интервале 570-1100К.

Для исследованных сталей отмечена линейная зависимость логарифма коэффициентов проницаемости от обратной температуры при незначительном различии в их величинах.

Построение кинетических кривых в функциональном масштабе (метод линеаризации [2,3]) установило, что проникновение тяжелых изотопов водорода через образец стали SS316L при давлениях 1200-40000 Па и температурах 650-1000 К описывается первым и вторым уравнениями Фика с граничными условиями первого рода. Используя равенство коэффициента проницаемости произведению коэффициентов диффузии и растворимости, была определена растворимость дейтерия и трития в стали SS316L.

Для сталей 12X18H10T и X16H15M3T1 характер зависимости логарифмов эффективных значений коэффициентов диффузии ИВ ($D_{эфф}$) от обратной температуры ($1/T$) носит нелинейный характер, а форма кинетических зависимостей потока не описывается уравнениями Фика. Обнаруженные нелинейности зависимости $lg(D_{эфф})=f(1/T)$ и кинетических кривых в функциональном масштабе скорее всего обусловлены наличием в структуре сталей 12X18H10T и X16H15M3T1 титансодержащих фаз, являющихся ловушками водорода и влияющими на кинетику проникновения ИВ через эти стали.

Литература

1. Daynes H. The process of diffusion through a rubber membrane. Proc. Roy. Soc., 1920, v. 97A, NA-685, p. 286-307
2. Швыряев А. А., Бекман И. Н., Вестник МГУ, Сер. 2. Химия. 1981. Т. 22, № 5, с. 517
3. Бекман И. Н., Швыряев А. А., Вестник МГУ, Сер. 2. Химия. 1981. Т. 22, № 5, с. 467-471

Влияние условий облучения на удержание газообразных продуктов ядерных реакций в конструкционных материалах

А. Г. Залужный, А. Л. Суворов

Институт теоретической и экспериментальной физики,
117259 Москва, Россия (zaluzhnyi@vitep5.itep.ru)

Известно, что под действием облучения материалы изменяют свои физические и механические свойства. Основными факторами, ограничивающими ресурс материалов, являются радиационное набухание, высокотемпературное и низкотемпературное радиационное охрупчивание, радиационная ползучесть и др. Большую роль в протекании этих нежелательных явлений играют газообразные продукты ядерных реакций, в том числе гелий.

Так как непосредственное облучение исследуемых материалов в реакторе требует значительного времени и материальных затрат, то для имитации накопления гелия в настоящее время используют различные экспрессные методы: облучение ионами гелия различных энергий, облучение высокоэнергетическими электронами и γ - квантами, насыщение из плазмы и др. Естественно возникает вопрос, насколько та или иная методика годится для адекватного моделирования реакторного облучения.

В данной работе предпринята попытка качественно сравнить кинетику десорбции гелия при линейном нагреве образцов, насыщенных разными способами (облучение на циклотроне и магнитной масс-сепарационной установке, реакторах ИРТ-2000 и БОР-60, а также насыщение гелием методом «третиего трюка»), а также оценивается роль дислокаций на удержание гелия в материалах.

Результаты исследования влияния условий введения атомов гелия в решетку материала на кинетику газовой выделения показали, что в отношении поведения гелия в конструкционных материалах имитационные эксперименты, обеспечивающие одновременное введение в решетку материала гелия и радиационных дефектов (в широких диапазонах концентрации гелия и радиационной повреждаемости) достаточно адекватно воспроизводят реакторное облучение. По всей вероятности, это обусловлено стабилизацией определенных конфигураций радиационных дефектов атомами гелия. В случае введения гелия бездефектными способами в каждом случае необходимо учитывать особенности его удержания и подвижности. Игнорирование этих особенностей может привести к некорректной трактовке полученных результатов. Тот факт, что выделение гелия при нагреве облученных образцов начинается лишь при температурах, превышающих температуры облучения, может быть использован для определения температуры облучения.

Исследование кинетики выделения гелия из образцов стали 0X16H15M3Б как после их предварительной деформации, так и в процессе деформации показали, что в процессе нагрева атомы гелия могут мигрировать по трубкам дислокаций, оказывая существенное влияние на выход гелия и его перераспределение в объеме материала. Энергия активации диффузии атомов гелия по трубкам дислокации для аустенитной стали 0X16H15M3Б около 0,7 эВ. Движущиеся дислокации могут способствовать выносу гелия на поверхность материала, границы зерен, межфазные границы.

Исследование влияния реакторного излучения на процессы газовой выделения изотопов водорода из ванадия

Т. В. Кульсартов*, В. П. Шестаков*, Е. А. Кенжин**

*Научно-исследовательский институт экспериментальной и теоретической физики,
Алматы, Казахстан (kulsartov@physics.kz)

** Институт Атомной Энергии НЯЦ РК, Семипалатинск-21, Казахстан

Сплавы на основе ванадия являются наиболее перспективными материалами для литиевого blankets-размножителя будущих реакторов синтеза. Это объясняется хорошим сочетанием физико-механических и радиационных свойств ванадиевых сплавов. В условиях работы термоядерных реакторов важной проблемой является поведение сплавов ванадия по отношению к изотопам водорода в присутствии нейтронного и гамма излучения. В данной работе представлены результаты первого этапа экспериментов в рамках работ по исследованию влияния реакторного излучения на параметры газовой выделения изотопов водорода из сплавов ванадия. В частности в данной работе приведены параметры газовой выделения и характеристики фазовых превращений гидрида ванадия при различных уровнях реакторного излучения

Предварительное насыщение образцов ванадия проводилось из газовой фазы. Все эксперименты проводились методом ТДС. Облучение проводилось на реакторе ИВГ1.М НЯЦ РК. Были проведены исследования для различных уровней реакторного излучения, которые зафиксировали влияние реакторного излучения на процессы газовой выделения водорода из ванадия.

Предварительные результаты по выделению трития из литиевой керамики Li_2TiO_3 в процессе длительного реакторного облучения

Т. В. Кульсартов*, И. Л. Тажибаева*, В. П. Шестаков*, М. А. Макуков*, С. Е. Афанасьев*,
Х. Кавамура**

*Научно-исследовательский институт экспериментальной и теоретической физики,
Алматы, Казахстан (makukov@physics.kz, mccoock@mail.ru)

** Blanket Irradiation and Analysis Laboratory at JAERI, Orai-machi, Japan

Литий-содержащие керамики, как, например, Li_2O , Li_2TiO_3 , Li_2ZrO_3 и Li_2SiO_4 считаются перспективными материалами для размножения трития в blankets ТЯЭУ. Керамика Li_2TiO_3 привлекла внимание многих исследователей из-за легкого восстановления сгенерированного в ней трития при низких температурах, химической устойчивости, и т.п.

В данной работе представлено описание части работы по исследованию литиевой керамики Li_2TiO_3 (95 % обогащением по ^6Li). Общая цель длительного реакторного облучения литиевой керамики Li_2TiO_3 была следующей: достижение выгорания по изотопу $^6\text{Li} \sim 20$ %. Также в процессе эксперимента ставилась задача регистрации *in situ* выделяющегося трития для различных температур керамики.

Здесь приведены предварительные результаты работы по исследованию выхода нарабатываемого трития из керамики Li_2TiO_3 при длительном облучении.

Радиационно-индуцированная сегрегация дейтерия в двухфазной стали X16H9M3

Г. А. Распопова*, В. Л. Арбузов*, В. В. Сагарадзе*, Н. Л. Печеркина*, К. В. Шальнов*,
Ю. Н. Зуев**

* Институт физики металлов УрО РАН, Екатеринбург, Россия (gaspopova@uran.ru)

** Российский Федеральный Ядерный Центр – Всероссийский НИИ технической физики,
Снежинск, Челябинской области, Россия

Имплантация водорода в металлические материалы сопровождается, как правило, образованием в них областей более или менее устойчивой сегрегации имплантанта (РИС водорода). При высокой подвижности атомов водорода устойчивость РИС обусловлена характеристиками взаимодействия водорода со структурными ловушками, которыми являются дефекты кристаллической решетки. Ранее показано, что в аустенитных сталях эффективными ловушками для водорода являются вакансионные кластеры, межфазные границы и большеугловые границы зерен.

Выделить вклад каждого типа ловушек в суммарное накопление водорода в облученных областях сталей оказывается достаточно трудно, так как в них помимо исходных ловушек под облучением возникают новые радиационно-индуцированные и (или) модифицируются исходные. Поэтому, изучение поведения имплантированного дейтерия в двухфазной стали, структуру и соотношение фаз в которой можно варьировать термообработкой, представляет особый интерес.

Объектом изучения РИС водорода выбрана двухфазная аустенито-мартенситная сталь X16H9M3 с различным соотношением фаз. Для этой стали известно, что РИС дейтерия в ней нестабильна по типу рассасывания, в отличие от аустенитной стали (где сегрегация нарастает после снятия облучения) и от ОЦК сплава Fe-Cr (где сегрегация стабильна).

Методом ядерных реакций исследовано влияние структурного состояния стали X16H9M3 на РИС дейтерия. Аттестацию микроструктуры стали проводили с помощью просвечивающей электронной, сканирующей электронной и туннельной методик.

Показано, что накопление имплантированного дейтерия в облученных ионами образцах стали зависит от соотношения мартенсита и аустенита в изучаемой стали, протяженности и структура межфазных границ. Установлено, что под облучением в стали имеют место структурно-фазовые превращения, увеличивающие захват имплантанта и усиливающие сегрегацию. Проанализированы возможные механизмы влияния элементов структуры на захват имплантированного дейтерия и предложена модель РИС дейтерия в изучаемой стали.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (Проект 04-02-16053).

Особенности термодесорбции гелия и водорода из ОЦК и ГЦК материалов

И. И. Чернов, С. Ю. Бинюкова, Б. А. Калинин, Тан Све
Московский инженерно-физический институт (государственный университет),
(chernov@phm.mephi.ru)

В конструкционных материалах ядерных и, особенно, термоядерных реакторов (ТЯР) накапливаются значительные концентрации трансмутационных и внедренных (в ТЯР) гелия и водорода, которые оказывают отрицательное влияние на их радиационную стойкость и могут являться причиной катастрофического ухудшения свойств и сокращения срока службы конструктивных элементов реакторов. В этой связи представляет интерес изучение поведения гелия и водорода в материалах разных кристаллических систем (ОЦК и ГЦК).

В работе методом термодесорбционной спектроскопии (ТДС) изучены особенности газовой выделенности из ОЦК (модельные Fe и Fe+≤0,4мас.%C, сталь типа X13) и ГЦК (модельные Ni и Ni+≤0,1мас.%C, сталь типа X16H15) материалов, имплантированных D_2^+ с энергией $E = 15$ кэВ при 100 К и 290 К до флюенса $\Phi = 5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$; He^+ с $E = 40$ кэВ при 290-900 К до $\Phi = 5 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-2}$ и последовательно H^+ с $E = 25$ кэВ при 290 К до $\Phi = 5 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-2}$.

Установлено, что в присутствии углерода количество захваченного водорода увеличивается по сравнению с чистыми металлами. При малых флюенсах D_2^+ ($< 10^{21} \text{ м}^{-2}$) коэффициенты ре-эмиссии β из чистых металлов и сплавов с углеродом отличаются значительно: β из сплавов Fe-C и Ni-C на 20 %, а из сталей на 30 % меньше, чем из чистых металлов. Для модельных материалов при высоких флюенсах ($> 10^{21} \text{ м}^{-2}$) β близок к единице для обоих видов материалов и не зависит от содержания углерода N_C . В сталях β значительно меньше, чем в модельных сплавах, и выходит на насыщение лишь при больших флюенсах – порядка 10^{22} м^{-2} .

Особенностями спектров ТДС водорода являются: при облучении при 100 К наличие растворенного углерода сдвигает пики ТДС в область более высоких температур, причем количество захваченных частиц почти не изменяется в зависимости от N_C ; при облучении при 280 К количество захваченного водорода в сплавах с углеродом существенно возрастает, причем максимальное количество газа захватывается в конструкционных сталях; в ГЦК материалах при 280 К влияние углерода на положение пиков ТДС незначительно, спектры простые, в то время как в ОЦК сплавах наблюдаются спектры ТДС со множеством пиков, причем при высоких флюенсах появляются высокотемпературные пики газовой выделенности. В Ni добавление углерода увеличивает энергию активации газовой выделенности E^a от 0,45 до 0,55 эВ, а в Fe - почти на нее не влияет ($E^a \approx 0,68$ эВ), но уменьшается предэкспоненциальный фактор, о чем можно судить по сдвигу зависимости $\ln(\alpha T_m^{-2})$ от $(1/T_m)$ при неизменном угле наклона прямой (α – скорость равномерного нагрева).

Водород, имея очень высокую подвижность в металлах, может быть захвачен лишь на дефектах кристаллической решетки, каковыми могут являться примесные атомы, сильно

искажающие решетку, границы раздела различных включений и частиц вторичных выделений с матрицей и т.д. То, что влияние углерода на захват и выделение водорода в сплавах существенно лишь при небольших флюенсах и почти отсутствует при высоких флюенсах, свидетельствует о насыщаемости ловушек при больших концентрациях внедряемого водорода. Кроме того, то, что в сплавах Ni и Fe с углеродом, облученных при низкой температуре (100 К), с увеличением N_C пики ТДС смещаются в высокотемпературную область, а при облучении при 280 К увеличивается лишь интенсивность пиков газовой выделения при неизменном положении температуры пика, дает основание утверждать, что атомы углерода как ловушки для водорода активны при низких температурах. Наряду с этим, возрастание E^a в сплаве Ni-C свидетельствует о том, что в Ni атомы углерода являются более сильными ловушками для внедренного водорода, чем в Fe, так как энергия активации газовой выделения не изменяется при введении в Fe углерода, хотя по абсолютной величине она выше ($\sim 0,7$ эВ), чем E^a из сплавов Ni-C (0,45-0,55 эВ).

Отличие сплавов Fe-C от Ni-C заключается в том, что в первых при $N_C > 0,01$ % присутствуют частицы второй фазы (цементита Fe_3C). При нагреве облученных образцов дейтерий выходит как в окружающую среду через внешнюю поверхность образцов, так и на границы второй фазы, откуда он начинает выделяться при превышении некоторого критического давления (обратное растворение в матрице и диффузия к поверхности), для чего требуются более высокие температуры. Эти факторы, по-видимому, являются как причиной сдвига температуры газовой выделения в сплавах Fe-C в область более высоких температур при высокой концентрации углерода, так и образования более сложных спектров ТДС.

Как и при внедрении водорода, при облучении ионами He^+ ТДС спектры из ОЦК материалов сложнее, чем из образцов с ГЦК решеткой, причем с увеличением температуры облучения температурный интервал газовой выделения уширяется. Установлено, что при дозе облучения $5 \times 10^{20} \text{ м}^{-2}$ в основном пике ТДС газовой выделения происходит ростом, миграцией, коалесценцией в ходе миграции и выходом пузырьков на поверхность с образованием на ней характерной «дырчатой» (pin-hole) структуры. В отличие от аустенитной стали с одним интенсивным пиком ТДС при температуре около 1380 К, в ферритно-мартенситной стали наблюдаются два мощных пика в спектре ТДС – при температурах около 1180 и 1300 К. Температура 1180 К совпадает с температурой $\alpha \rightarrow \gamma$ превращения стали X13 при нагреве. Поэтому можно предположить, что облегченная миграция пузырьков в ОЦК решетке приводит к частичному выходу их на поверхность до этой температуры, а при более высокой температуре затрудненная их миграция в ГЦК решетке вызывает выход пузырьков уже из аустенита при 1300 К.

Теоретическое и экспериментальное исследование гидридов в циркониевых компонентах ядерных реакторов

А. А. Шмаков*, R. L. Eadie**, D. Yan**

* Московский инженерно-физический институт, Москва, Россия (shmakov@phm.mephi.ru)

** University of Alberta, Edmonton, Canada

Замедленное гидридное растрескивание является одним из механизмов разрушения наводороженных сплавов циркония, ниобия, титана и ванадия. Механизм замедленного гидридного растрескивания предполагает диффузионное накопление водорода у концентратора растягивающих напряжений, образование гидридных пластин, ориентированных перпендикулярно приложенной нагрузке, их рост до критического размера и разрушение охрупченной гидридами области. Циклическое повторение указанных процессов приводит к постепенному разрушению изделия. Общим недостатком известных моделей замедленного гидридного растрескивания является пренебрежение зависимостью критических параметров гидридных выделений от температуры и коэффициентов интенсивности напряжений. Такое допущение ограничивает предсказательную силу моделей и снижает достоверность теоретических результатов.

В настоящей работе предложена модель, позволяющая прогнозировать критическую длину и толщину гидридных пластин при замедленном гидридном растрескивании в промышленных сплавах циркония [1], а также проведена экспериментальная верификация этой модели на примере реакторных труб из сплава Zr–2,5%Nb [2, 3]. Разработанная теоретическая модель основана на детальном анализе распределения растягивающих напряжений в области острой трещины нормального отрыва. Эксперименты проводили на фрагментах стандартных труб давления реакторов CANDU (Canadian Deuterium Uranium) при 150 °C и коэффициентах интенсивности напряжений от 5,9 до 20 МПа $\sqrt{м}$. При этом наблюдали «тоннельный» эффект, связанный с неоднородностью напряженного состояния по толщине трубчатых образцов. В поверхностных слоях образца возникало плоское напряженное состояние, а в объеме – более жесткое состояние плоской деформации. Поэтому образование и разрушение гидридов внутри образца происходило интенсивнее, чем у поверхности. Показано, что полученные экспериментальные результаты хорошо согласуются с теоретическими.

Литература

1. Шмаков А. А., *Атомная энергия*. 2004, в печати.
2. Yan D., Eadie R. L., *Intern. J. Pressure Vessels & Piping*. **77**, 167 (2000).
3. Yan D., Eadie R. L., *J. Mater. Science*. **35**, 5667 (2000).

