

# МИКРОСТРУКТУРНАЯ ПРИРОДА УПРОЧНЕНИЯ СТАЛИ 12Х18Н10Т, ОБЛУЧЕННОЙ ДО 55СНА И ПОДВЕРГНУТОЙ ИЗОХРОННЫМ ПОСТ-РАДИАЦИОННЫМ ОТЖИГАМ

К.В. Цай

*Институт ядерной физики, НЯЦ РК, Алматы*

С помощью просвечивающей электронной микроскопии исследованы изменения микроструктуры аустенитной стали 12Х18Н10Т - материала чехла отработанной сборки реактора БН-350, в результате серии пост-радиационных часовых отжигов в интервале температур 450-1050°С. Произведен расчет упрочнения облученной стали в рамках модели дисперсных барьеров.

Пост-радиационная термическая обработка является одним из перспективных способов восстановления микроструктуры и свойств конструкционных сталей после долговременного облучения [1-2]. Для выбора режимов термообработки необходимо проведение широких предварительных исследований влияния пост-радиационных отжигов на изменения микроструктуры и свойств сталей, в течение длительного времени облучавшихся в реальных условиях атомных энергетических установок. Примером такого рода исследований являются результаты, представленные в настоящей статье.

## Материалы и методы исследования

Объектом изучения в работе являлась облученная аустенитная сталь 12Х18Н10Т, вырезанная из стенки шестигранного чехла тепловыделяющей сборки (ТВС) ЦЦ-19 реактора БН-350 с отметки «+160мм» от центра активной зоны (ц.а.з.). Дозовые и температурные характеристики облучения: 55.4сна,  $113 \times 10^{-8}$  сна/с и 370°С. Образцы подвергались последовательным изохронным отжигам в течение 1 часа при нескольких температурах  $T_{отж}$  в интервале от 450 до 1050°С. Отжиг проводился в вакуумной печи СШВЛ-0.62/16 при уровне вакуума  $10^{-5}$  мм.рт.ст. Для характеристики тонкой структуры облученной стали после каждого отжига применялась методика просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) (электронный микроскоп JEM-100СХ). После каждого отжига измеряли микротвердость облученной стали по методике Виккерса с помощью микротвердомера ПМТ-3.

## Результаты эксперимента

Согласно ПЭМ-исследованиям микроструктура стали после облучения на отметке «+160мм» (Рис.1а) содержала вакансионные поры, вторичные выделения, дефектные петли Франка, мелкие комплексы дефектов (мк-дефекты), имеющих вид темных точек на снимках в «светлом поле», и дислокации (сетка дислокаций и фрагменты бездефектных полных петель). В результате проведения пост-радиационных последовательных отжигов микроструктура облученной стали существенно изменяется (см. Рис.1 б-е и таблицу 1). В таблице также приведены данные для пор, связанных с частицей вторичной фазы и изолированных (матричных) пор.

Максимальная плотность вакансионных пор соответствует отжигу при 550°С (Рис.2а). Средний диаметр пор сначала уменьшается с ростом  $T_{отж}$ , достигая минимума при 550°С, а затем монотонно возрастает вплоть до 850°С. Изменение плотности и размеров пор после изохронных отжигов влияет на величину распухания стали, которая достигает максимума после отжига при 450°С. В результате последующих отжигов распухание существенно уменьшается, даже несмотря на рост размеров пор (при 850°С). Можно отметить ступенчатый характер уменьшения распухания в интервале  $T_{отж}$ : 550-650°С. Экстраполяция кривой, аппроксимирующей плотность пор в интервале  $T_{отж}$ : 850-1050°С показывает, что полное исчезновение пор под действием термообработки может иметь место вблизи  $T_{отж} = 1000^\circ\text{C}$ . Начальный уровень вакансионного распухания до отжига составлял 2.1%.

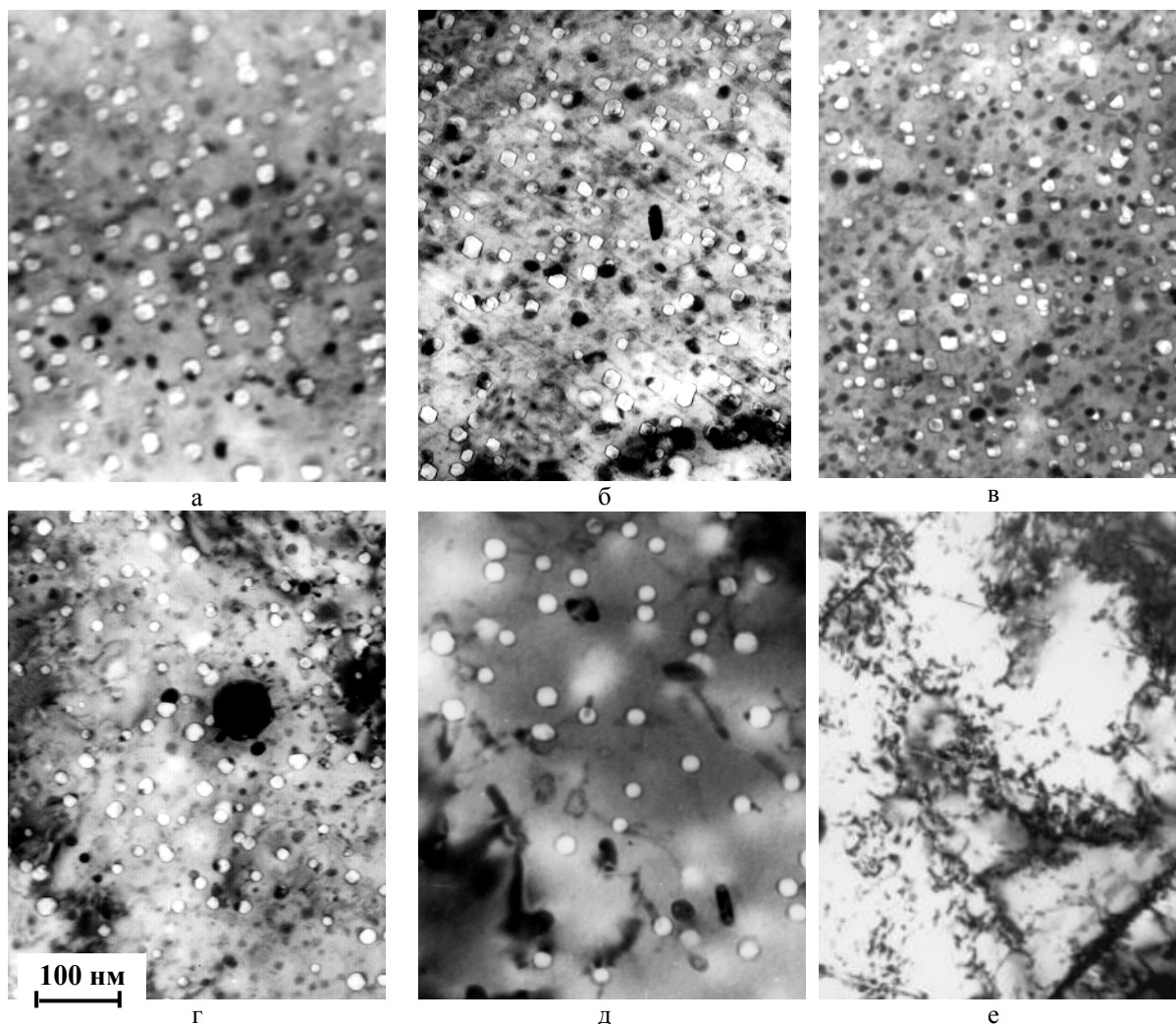
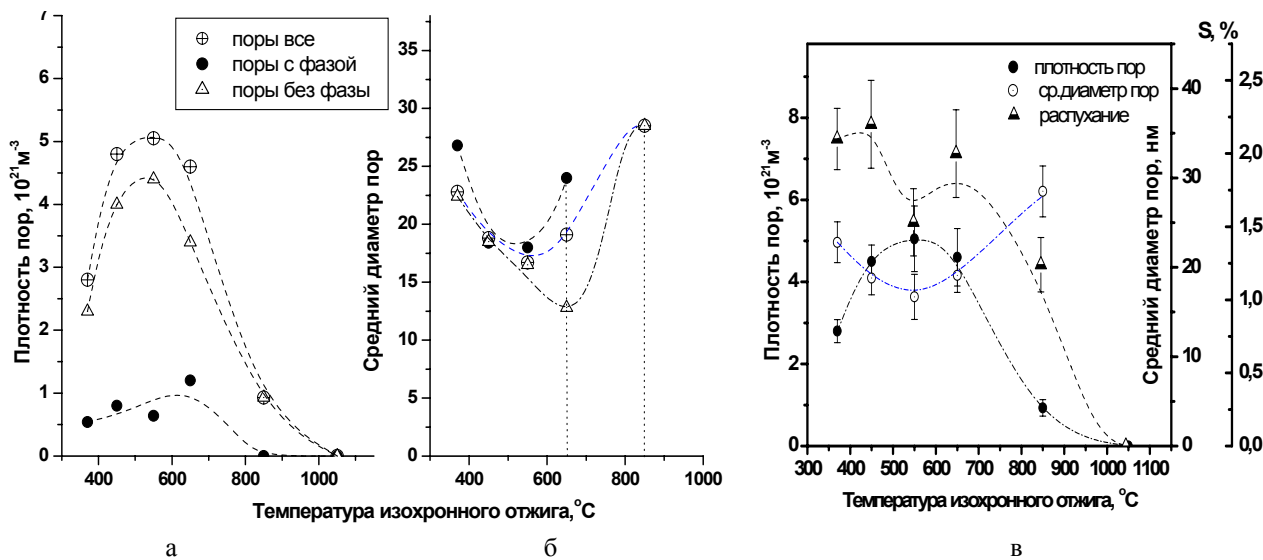


Рис.1. Дефектная микроструктура в стали 12X18H10T, облученной до 55.4сна, до (а) и после часовых изохронных отжигов при 450°C(б), 550°C(в), 650°C(г), 850°C(д) и 1050°C(е).  $\times 100000$

Плотность вторичных выделений, дефектных петель, мк-дефектов и сетки дислокаций в стали 12X18H10T также имеют, по крайней мере, один экстремум (Рис.3б) на интервале рассмотренных  $T_{отж}$ . Причем для мк-дефектов максимальное значение плотности зафиксировано после отжига при 450°C, для дефектных петель – при 550°C, для дислокаций – при 650°C. Наличие двух «горбов» в данных изменения плотности выделений может быть связано с изменением состава вторичных частиц или степени их когерентности с матрицей при повышении  $T_{отж}$ .

Из рис.2-3 следует, что возрастание плотности радиационных дефектов чаще всего сочетается с некоторым уменьшением их средних размеров, и, наоборот, увеличение средних размеров ведет к быстрому уменьшению плотности дефектов. В подсистеме вакансионных пор после отжигов при 450-550°C особенно интенсивно возрастает плотность дефектов, не связанных с частицами вторичных фаз. При этом доля мелких дефектов увеличивается и, соответственно, сокращается доля крупных. После отжигов при 550°C и 650°C в микроструктуре начинают наблюдаться поры размером менее 5 нм. Одновременно имеет место достаточно сильное увеличение плотности междуузельных петель Франка. Все выше сказанное свидетельствует о том, что при данных  $T_{отж}$  имеет место интенсивный рост мелких пор (ранее невидимых в ПЭМ) и петель Франка за счет усиления миграции вакансий и междуузельных атомов. Одновременно, в результате отжига могут происходить сложные процессы взаимодействия вакансий и междуузельных атомов с крупными дефектами:

испускание точечных дефектов в матрицу - вакансий порами и междуузельных атомов петлями Франка, аннигиляция вакансий на петлях и поглощение междуузельных атомов порами. Этим можно объяснить тот факт, что средние размеры наблюдаемых дефектов уменьшаются с ростом  $T_{отж}$  в интервале 450-650°C. Максимальные значения плотности и размеров пор, связанных с вторичными частицами, наблюдается после отжига при 650°C, одновременно с максимумом содержания вторичных выделений. После отжига при 850°C пор с выделениями уже не наблюдается, а количество вторичных частиц существенно уменьшается, что свидетельствует о перерастворении части выделений в матрице.



а- плотность пор, б- средний размер пор, в- распухание  
 Рис.2. Изменение характеристик пор (для подсистем «все поры», «поры с фазой» и «поры без фазы») и распухания с ростом  $T_{отж}$

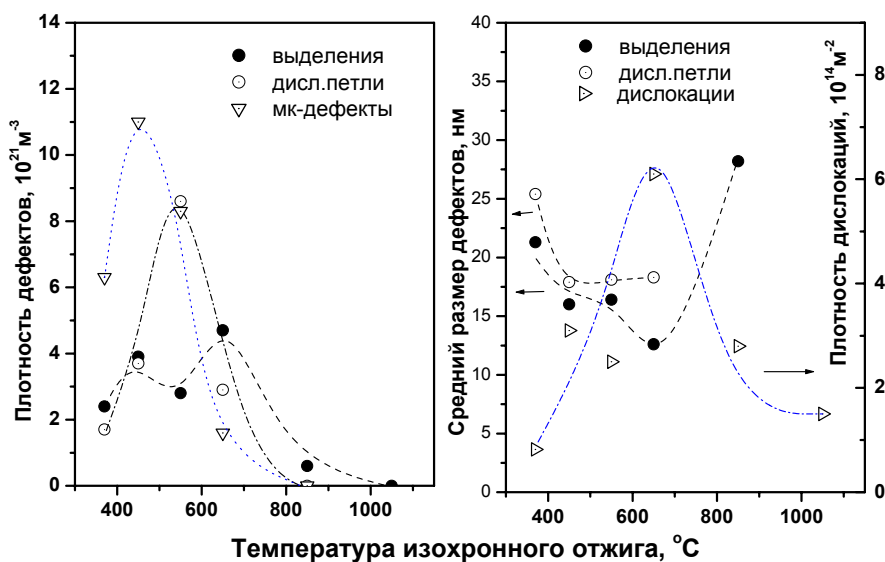


Рис. 3. Изменение характеристик вторичных выделений, дефектных петель, мк-дефектов и сетки дислокаций от температуры последовательных изохронных отжигов

Согласно [3] в стали 12X18H10T выделения, связанные с порами и образующиеся под облучением в интервале температур 360-600°C, идентифицируются как G-фаза – силицид стехиометрического состава  $A_6M_{16}X_7$ , где A-Ti, Cr, Mn; M- Ni, Fe; X- Si, B, C. Температура отжига 850°C, по-видимому, лежит за пределами верхней границы области

термодинамической стабильности G-фазы. Согласно исследованиям, проведенными на близкой по составу стали 12X18H9T [4], возможными типами вторичных выделений после часовых отжигов при  $T_{отж}$ : 850-1050°C являются карбонитриды типа M(C,N) и карбид  $M_{23}C_6$ , образующиеся в матрице и по границам зерен. С ростом  $T_{отж}$  выделения увеличиваются в размерах, теряют когерентность с матрицей, в результате чего их вклад в упрочнение стали существенно уменьшается.

### Описание уменьшения радиационного упрочнения стали 12X18H10T в рамках модели дисперсных барьеров

Корреляционное соотношение между приростом предела текучести  $\Delta\sigma_{0.2}$  облученной стали и изменением микротвердости  $\Delta H_\mu$ , как правило, получают на основе анализа большого числа данных для сталей, облученных в реакторах разного типа [5-6]. Изменится ли оно в случае применения к облученному материалу дополнительной пост-радиационной обработки (отжига, деформации) или нет – вопрос, который требует дополнительного изучения. Предположим, что в результате пост-радиационной обработки облученных сталей корреляционное отношение меняется незначительно. Тогда, используя известную модель дисперсных барьеров [7], можно попытаться описать интенсивность отжига радиационного упрочнения на основе данных по плотностям и размерам радиационных дефектов, полученных в ПЭМ. При расчете, как и в случае облучения [8], использовали корреляционное соотношение, полученное для аустенитных сталей в работе [6]  $\Delta\sigma_{0.2} \approx 3.03 \cdot \Delta H_\mu$ , где  $\Delta\sigma_{0.2}$  измеряется в [МПа], а  $\Delta H_\mu$  в [кг/мм<sup>2</sup>].

В работе [9] использована следующая формула для описания упрочнения в рамках модели дисперсных барьеров для случая низкодозного и высокодозного облучения стали 12X18H10T

$$\Delta\sigma_{0.2}^{irr\ calc} = \Delta\sigma_{LR} + \sqrt{\sum_i (\Delta\sigma_{SR,i})^2} - \sigma_{LR}^{MTO}, \quad (1)$$

где  $\Delta\sigma_{LR} = M\alpha_d G b \sqrt{\rho_d}$  - это вклад от сетки дислокаций,  $\Delta\sigma_{SR,i} = M\alpha_i G b \sqrt{\rho_i \cdot \bar{d}_i}$  - вклад от локальных «барьеров» i-го сорта, которыми в случае облученной стали являются вакансионные поры, дефектные петли и вторичные выделения. M – фактор Тейлора;  $\alpha$  - мера мощности барьеров; G- модуль сдвига матрицы; b - вектор Бюргерса движущейся дислокации;  $\rho_d$ ,  $\rho_i$  и  $\bar{d}_i$  – значения плотности сетки дислокаций, а также плотности и средних размеров радиационных дефектов, определяемые экспериментально. В работе были использованы следующие константы: M = 3.06; b = 2.5×10<sup>-10</sup>м; модуль сдвига для сталей типа X18H9T-X18H10T G = 78.7ГПа (при 25°C) был взят из работы [10]. Было показано, что в случае, когда  $\Delta\sigma_{0.2}^{irr\ exp} = \sigma_{0.2}^{irr\ exp} - \sigma_{0.2}^{MTO}$ , где  $\sigma_{0.2}^{MTO}$  отвечает необлученной стали в состоянии МТО в правой части выражения (1) необходимо учитывать дислокационный вычет  $\Delta\sigma_{LR}^{MTO} \sim \sqrt{\Delta\rho_d^{MTO}}$ .

Исследования и пробные оценочные расчеты по формуле (1) с учетом дислокационного вычета от исходного состояния в случае термообработанной стали показали, что для хорошего соответствия между экспериментальными данными и расчетными вкладами в упрочнение  $\Delta H_\mu$  (или  $\Delta\sigma_{0.2}$ ) от структурных дефектов необходимо учитывать следующие моменты:

- 1) сделать допущение на качественное изменение состояния дефектов и аустенитной матрицы после термической обработки;
- 2) учесть переход части радиационно-термических дефектов после термообработки из одной категории в другую;

3) учесть процентную долю участков зерен, для которых проведена оценка плотности дефектов, поскольку значительный объем зерен (особенно в приграничных областях) при высоких  $T_{отж}$  полностью освобождается от дефектов;

4) сравнивать измеряемые величины  $H_{\mu}$  (или  $\sigma_{0.2}$ ) после отжига с величинами микротвердости (или предела текучести) состояния максимального возврата облученной стали при высокотемпературном отжиге.

Поясним последний пункт. В принципе для оценки радиационного прироста микротвердости после отжига следовало бы применять выражение

$$\Delta H_{\mu}(T_{отж}) = H_{\mu}(T_{отж}) - H_{\mu}^{MTO}(T_{отж}), \quad (2)$$

где  $H_{\mu}(T_{отж})$  - микротвердость после облучения и пост-радиационного отжига,  $H_{\mu}^{MTO}(T_{отж})$  - микротвердость стали необлученного чехла (МТО) после отжига при той же температуре. Выражение (2) справедливо пока  $H_{\mu}(T_{отж}) > H_{\mu}^{MTO}(T_{отж})$ . Если  $H_{\mu}(T_{отж}) = H_{\mu}^{MTO}(T_{отж})$ , то отсчет следовало бы вести от  $H_{\mu 0}$  аустенизированного состояния. Одновременно при расчете  $H_{\mu}(T_{отж})$  нужно было бы учитывать вычет от МТО-дислокаций при  $T_{отж}$ . Однако, на практике характеристики ( $H_{\mu}^{MTO}, \sigma_{0.2}^{MTO}, \rho_{\epsilon}^{MTO}$ ) исходного состояния облученных реакторных сборок неизвестны. Также неизвестны зависимости изменения этих величин ( $H_{\mu}^{MTO}(T_{отж}), \sigma_{0.2}^{MTO}(T_{отж}), \rho_{\epsilon}^{MTO}(T_{отж})$ ) с ростом  $T_{отж}$ . Поэтому предложено при отжиге отсчитывать  $\Delta H_{\mu}(T_{отж})$  от  $H_{\mu 0}$  (состояния максимального возврата структуры и свойств в результате высокотемпературного отжига), а дислокационный вычет состояния максимального возврата не учитывать. Таким образом, для стали 12X18H10T сборки ЦЦ-19 на отметке «+160» при  $T_{отж} = 450-1050^{\circ}\text{C}$  максимальному возврату при  $T_{отж} : 800 \div 1050^{\circ}\text{C}$  отвечает  $H_{\mu 0} = 158 \text{ кг/мм}^2$  [11] (состояние максимального возврата).

Необходимо также отметить, что для стали сборки ЦЦ-19 «+160мм» при расчете упрочняющего вклада от вакансионных пор были использованы параметры изолированных пор, тогда как поры с фазой считались аналогом выделений сходного размера. Учитывалось влияние уровня распухания на величину модуля сдвига  $G' = G \cdot (1 - 2S)$  [12].

В результате выполненных расчетов показано, что неплохое качественное и количественное согласование оценочных данных с экспериментом (см. Рис. 4) достигается при значениях упрочняющих коэффициентов разного типа дефектов, приведенных в таблице 1.

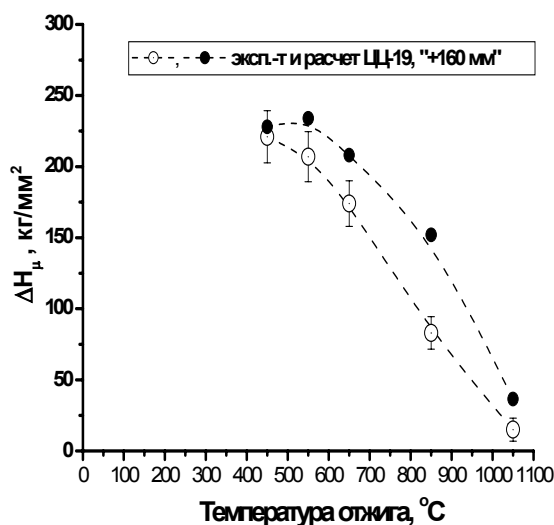


Рис. 4. Расчет изменения микротвердости в ходе последовательных изохронных отжигов облученной нейтронами стали 2X18H10T, вырезанной с отметки «+160мм» от ц.а.з. чехла сборки ЦЦ-19 (реактора БН-350)

Таблица 1. Расчетные значения коэффициентов  $\alpha_i$  в модели дисперсных барьеров для облученной стали 12X18H10T, подвергнутой пост-радиационному отжигу

Материал	T <sub>отж</sub> , °C	Коэффициенты $\alpha_i$ структурных дефектов					
		Поры Вак./гел	Петли Франка	Клас-теры	Полные петли	Выде-ления	Дисло-кации
12X18H10T ЩЦ-19 «+160мм»	450	1*	0.33	0.2	-	0.33	1.5
	550	1*	0.33	0.2	-	0.33	1.5
	650	1*	-	0.2	0.2	0.33	1.5
	850	1*	-	-	-	0.33	1.5
	1050	-	-	-	-	-	1.5*

\* - дефекты, дающие основной упрочняющий вклад

### Заключение

ПЭМ-исследование облученной нейтронами стали 12X18H10T после серии часовых пост-радиационных отжигов в интервале температур 450-1050°C показало сложный характер изменения тонкой структуры радиационных дефектов. После облучения до дозы 55.4сна при температуре 370°C микроструктура стали содержала вакансионные поры, петли, вторичные выделения, мк-дефекты и дислокации. При этом для всех наблюдаемых типов дефектов имеет место зависимость от температуры отжига с одним (или двумя) выраженным экстремумом. Так плотности дефектов имеют максимум, а средние размеры, соответственно – минимум в интервале температур отжигов 450-650°C. С дальнейшим повышением T<sub>отж</sub> плотность дефектов существенно уменьшается, а их размеры (в случае пор и выделений) растут. Распухание стали, составляющее после облучения 2.1%, также демонстрирует максимум величины после отжига при 450°C, а при более высоких T<sub>отж</sub> - постепенное уменьшение. Полное исчезновение вакансионных пор имеет место при температурах отжига ~1000°C. Таким образом, поры не только играют ведущую роль в радиационном повреждении и упрочнении стали под облучением по сравнению с другими типами дефектов, но и являются «долгоживущими» дефектами (вместе с вторичными выделениями) по температуре отжига.

Показана применимость модели дисперсионных барьеров к оценке упрочнения высоко-облученной стали, подвергнутой последовательным пост-радиационным изохронным отжигам. Для достижения единообразия при оценке изменения упрочнения стали на разных стадиях отжига за исходные рекомендовано брать H<sub>μ0</sub> (или  $\sigma_{0,2}^0$ ) состояния максимального возврата и не учитывать дислокационный вычет в этом состоянии из-за его малости.

### Литература

1. Nikolaeva A.V., Nikolaev Yu.A., Kevorkyan Yu.R. Restoration of Mechanical Properties of Irradiated Steel by Thermal Annealing // Atomic Energy.-2001. -V.90.- N 6.- P. 475-479.
2. Cole J.I., Allen T.R. Microstructural changes induced by post-irradiation annealing of neutron-irradiated austenitic stainless steels // J. Nucl.Mater.- 2000.- V.283-287.- P.329-333.
3. Воеводин В.Н., Неклюдов И.М. Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов.- Киев: Наукова Думка, 2006. 375с.
4. Цай К.В., Максимкин О.П., Турубарова Л.Г. Эволюция выделений вторичных фаз при отжиге аустенитной стали 12X18H9T, облученной нейтронами до 5 сна // ФММ.- 2007.- Т.103.- №3.- С.294-302.

5. Higgy H.R., Hommad F.H. Effect of fast-neutron irradiation on mechanical properties of stainless steels: AISI types 304, 316, 347 // J. Nucl. Mater.- 1975.- V.55.- P.177-186.
6. Busby J.T., Hash M.C., Was G.S. The relationship between hardness and yield stress in irradiated austenitic and ferritic steels // J. Nucl. Mater.- 2005.- V. 336.- P.267.-278.
7. Lucas G.E. The evolution of mechanical property change in irradiated austenitic steels // J. Nucl. Mater.- 1993.- V. 206.- P.287.-305.
8. Цай К.В. Микроструктурные исследования стали 12Х18Н10Т, облучавшейся нейтронами в области рефлектора реактора БН-350 // Вестник НЯЦ.- 2008.- Вып.4.- С.88-98.
9. Цай К.В. Оценка радиационного упрочнения стали 12Х18Н10Т – материала чехла отработавшей топливной сборки реактора БН-350 // Хабаршысы - Вестник Каз НТУ.- 2009.- № 5.- С.36.
10. Porollo S.I., Dvoriashin A.M., Konobeev Yu.V., Ivanov A.A., Shulepin S.V., Garner F.A. Microstructure and mechanical properties of austenitic stainless steel 12Х18Н9Т after neutron irradiation in the pressure vessel of BR-10 fast reactor at very low dose rates // J. Nucl.Mater. - 2006.-V.359.-I.1-2.-P.41-49.
11. Максимкин О.П., Цай К.В., Турубарова Л.Г., Сильнягина Н.С., Доронина Т.А. Изменение микроструктуры и свойств облученной нейтронами аустенитной стали 12Х18Н10Т в результате пост-радиационных отжигов // Вестник НЯЦ.- 2008.- Вып.4.- С.99-105.
12. Garner F.A., Hamilton M.L., Panayotov N.F. et.al. The microstructural origins of yield strength changes in AISI 316 during fission or fusion irradiation //J. Nucl. Mater.- 1981.- V. 103-104.- P.803-808.

**55АКЖ ДЕЙІН СӘУЛЕЛЕНДІРІЛГЕН ЖӘНЕ ИЗОХРОНДЫҚ ПОСТ-РАДИАЦИЯЛЫҚ ҚЫЗДЫРУҒА ШАЛЫНҒАН МИКРОҚҰРЫЛЫМДЫҚ ТАБИҒАТЫМЕН БЕРІКТЕНДІРГЕН БОЛАТ 12Х18Н10Т**

**К.В. Цай**

Температураның 450-1050°C аралығында бір сағаттық радиациядан кейінгі күйдірулер легінің нәтижесінде БН-350 реакторының пайдаланып шығарылған жинамасы қабының материалы – 12Х18Н10Т аустенитті болаттың микроқұрылымының өзгерістері жарық түсіруші электрондық микроскопия көмегімен зерттелген. Реакторлық сәулелендіру нәтижесінде болаттың беріктенуі дисперсиялық тосқауылдар моделі шеңберінде бағаланған.

**MICROSTRUCTURAL NATURE OF STRENGTHENING OF 12CR18NI10TI STEEL IRRADIATED UP TO 55DPA AFTER POST-IRRADIATION ANNEALINGS**

**K.V. Tsay**

The microstructure changes in 12Cr18Ni10Ti austenitic steel – the material of a spent fuel assembly shroud of the BN-350 reactor – after a series of post-irradiation annealings in the range of 450-1050°C were studied using the transmission electron microscopy. The strengthening of irradiated steel was carried out in the model of dispersed barriers.