

На правах рукописи

ДИКОВ АЛЕКСЕЙ СЕРГЕЕВИЧ

**ТЕРМИЧЕСКАЯ И РАДИАЦИОННАЯ ПОЛЗУЧЕСТЬ
АУСТЕНИТНЫХ И ФЕРРИТНО-МАРТЕНСИТНЫХ СТАЛЕЙ
ПРИМЕНИТЕЛЬНО К ДЛИТЕЛЬНОМУ ХРАНЕНИЮ
ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА**

Направление 14.06.01 – «Ядерная энергетика и технологии»
Специальность 05.14.03 – Ядерные энергетические установки, включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Автор:



Москва 2021

Работа выполнена в Национальном исследовательском ядерном университете
«Московский инженерно-физический институт»

НАУЧНЫЙ
РУКОВОДИТЕЛЬ: **Чернов Иван Ильич**, профессор, доктор физико-математических наук, профессор отделения ядерной физики и технологий офиса образовательных программ (М) НИЯУ МИФИ, г. Москва

НАУЧНЫЙ
КОНСУЛЬТАНТ: **Апсэ Владимир Александрович**, кандидат технических наук, заведующий научно-исследовательским сектором ИЯФиТ НИЯУ МИФИ, г. Москва

ОФИЦИАЛЬНЫЕ
ОППОНЕНТЫ: **Гурович Борис Аронович**, доктор технических наук, профессор, директор, Института реакторных материалов и технологий НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва

Неустроев Виктор Степанович, доктор технических наук, ведущий научный сотрудник АО «ГНЦ НИИАР», г. Димитровград

Поролло Сергей Иванович, кандидат технических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории 24 ОИРМиТ ГНЦ РФ – ФЭИ им. А.И. Лейпунского», г. Обнинск

Защита состоится «17» ноября 2021 г. в 15 час. 00 мин. на заседании диссертационного совета МИФИ.01.03 в НИЯУ МИФИ по адресу: 115409, Москва, Каширское шоссе, 31. Тел. +7 (499) 324-87-66, факс +7 (499) 324-21-11

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ и на сайте <https://ds.mephi.ru..>

Автореферат разослан « » 2021 г.

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв в двух экземплярах, заверенных печатью организации, по адресу НИЯУ МИФИ.

Ученый секретарь диссертационного совета,
кандидат технических наук, доцент



Е.Г. Куликов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования

Хранение отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) является неотъемлемым этапом ядерного топливного цикла. Временной интервал, в течение которого возникает необходимость хранения отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС), обусловлен различными причинами. Это может быть хранение с целью снижения радиоактивности и остаточного тепловыделения (3–5 лет на площадке АЭС), сбор перед отправкой на переработку или захоронение (~ 30 дней), длительное хранение в виду нехватки мощностей по переработке и последующему захоронению радиоактивных отходов (~ 50 и более лет) и т.д. Однако, вне зависимости от причин, необходимость в хранении ОТВС всегда вызвана пониманием важности безопасного обращения с ОЯТ и недопущением распространения радиоактивных веществ в окружающую среду. В связи с этим научные исследования, направленные на повышение безопасности при обращении с ОЯТ, не теряют своей актуальности.

По состоянию на 1 января 2017 года в России было накоплено более 22 тысяч тонн ОЯТ, большая часть которого находилась на стадии хранения и ожидала переработки. Эта ситуация привела к необходимости разработки и ввода в эксплуатацию централизованного «сухого» хранилища для ОЯТ.

Следует отметить, что проблемы накопления ОЯТ не обходят стороной и другие страны. Так, например, в Казахстане ОТВС (~ 3000 шт.) выведенного из эксплуатации в 1998 году реактора БН-350, в виду отсутствия установок по переработке и захоронению, а также для обеспечения безопасного обращения с ОЯТ, были направлены на длительное «сухое» хранение.

Поскольку надежное обращение с ОЯТ определяется способностью конструкционных материалов сохранять физико-механические характеристики в течение длительного времени после активной эксплуатации, возникает потребность в знаниях о состоянии конструкционных материалов чехлов ТВС и/или оболочек твэлов, отработавших свой эксплуатационный срок в реакторе.

В связи с этим прогнозирование поведения служебных свойств конструкционных материалов ОТВС после их эксплуатации в реакторе, на основе экспериментального исследования материалов облученных изделий, является актуальным направлением исследований.

Цель работы

Целью работы явилось выявление закономерностей термической и радиационной ползучести реакторных сталей разного класса применительно к проблеме длительного хранения отработавших тепловыделяющих сборок.

Для достижения поставленной цели решены следующие задачи.

- Обоснован выбор методов и условий исследования образцов конструкционных сталей аустенитного и ферритно-мартенситного классов, изготовленных из граней чехлов ОТВС реактора БН-350.
- Проведены структурные исследования необлученных и облученных в качестве материала чехла ТВС реактора БН-350 сталей, направленные на определение состояния исследуемых типов сталей.
- Проведены испытания на одноосное растяжение необлученных и облученных до разных повреждающих доз сталей аустенитного и ферритно-мартенситного классов при температурах, соответствующих штатным (350 °С) и критическим (450–550 °С) условиям хранения ОЯТ.
- Изучены закономерности структурно-фазовых изменений, протекающих в сталях при деформировании в условиях штатных и критических температур длительного «сухого» хранения ОЯТ.
- В условиях, имитирующих длительное «сухое» хранение ОЯТ, проведены испытания на ползучесть образцов конструкционных сталей, изготовленных из граней чехлов необлученных ТВС и ТВС, отработавших эксплуатационный срок в реакторе БН-350 и длительное время выдержанных в приреакторном бассейне-хранилище.
- Исследованы изменения структурно-фазового состава аустенитных и ферритно-мартенситных сталей после испытаний на ползучесть в штатных и критических условиях длительного «сухого» хранения ОЯТ.
- Проведен сравнительный анализ изменения физико-механических свойств и характеристик ползучести необлученных и облученных аустенитных и ферритно-мартенситных сталей.

Объект исследования

Стали аустенитного 12X18H10T и 08X16H11M3 и ферритно-мартенситного 1X13M2БФР классов – материалы отработавших тепловыделяющих сборок реактора БН-350.

Предмет исследования

Ползучесть конструкционных материалов шестигранных труб чехлов ОТВС реактора БН-350, моделирующих штатное и критическое условия длительного «сухого» хранения ОЯТ.

Научная новизна и практическая значимость работы

1. Впервые получены сравнительные данные о механических свойствах при испытаниях на одноосное растяжение необлученных и облученных до разных повреждающих доз сталей аустенитного и ферритно-мартенситного классов при температурах, соответствующих штатным (350 °С) и критическим (450–550 °С) условиям хранения ОЯТ.

2. Впервые получены данные о ползучести конструкционных материалов чехловых труб ТВС реактора на быстрых нейтронах в условиях, имитирующих «сухое» хранение после активной эксплуатации и длительной выдержки (~ 10 лет) в приреакторном бассейне, т.е. непосредственно перед отправкой ОТВС на «сухое» хранение.

3. В результате сравнительных исследований структуры аустенитных и ферритно-мартенситных сталей впервые выявлено, что структурные перестроения, протекающие в сталях в процессе ползучести, аналогичны структурным изменениям, протекающим в сталях при одноосном растяжении в идентичных условиях.

4. Разработана феноменологическая модель «скольжения – переползания» для оценки скорости ползучести реакторных конструкционных сталей аустенитного класса при длительном «сухом» хранении ОЯТ, который откорректирован с учетом полученных в работе экспериментальных данных.

Практическая значимость работы заключается в том, что результаты исследования позволяют прогнозировать поведение оболочек ОЯТ при хранении ОТВС, а разработанная феноменологическая модель пригодна для оценок целостности оболочек ОЯТ при долговременном хранении в штатных условиях, что подтверждено актом о внедрении результатов работы в республиканское государственное предприятие «Институт ядерной физики» Республики Казахстан. Совокупность полученных в работе результатов представляет интерес для исследователей, работающих в области физического, реакторного материаловедения и фундаментальных проблем взаимодействия излучения с твердым телом.

Основные положения, выносимые на защиту.

1. Результаты испытаний на одноосное растяжение необлученных и облученных нейтронами до разных повреждающих доз сталей аустенитного и ферритно-мартенситного классов при температурах, соответствующих штатным (350 °С) и критическим (450–550 °С) условиям хранения ОЯТ.

2. Выявленные закономерности структурно-фазовых изменений, протекающих в сталях при деформировании при штатных и критических температурах длительного «сухого» хранения ОЯТ.

3. Результаты сравнительных испытаний на ползучесть в условиях, моделирующих длительное «сухое» хранение ОЯТ, конструкционных сталей, изготовленных из граней чехлов необлученных ТВС и ТВС, отработавших эксплуатационный срок в реакторе БН-350 и длительное время выдержанных в приреакторном бассейне-хранилище.

4. Выявленные закономерности изменения механических свойств конструкционных материалов ОТВС в условиях, моделирующих длительное «сухое» хранение ОЯТ.

5. Экспериментальные результаты сравнительных исследований структуры аустенитных и ферритно-мартенситных сталей после механических испытаний различными методами.

6. Результаты анализа изменений физико-механических свойств и характеристик ползучести необлученных и облученных аустенитных и ферритно-мартенситных сталей.

7. Результаты расчетов формоизменения оболочек твэлов при разных температурах пострadiационного старения в процессе длительного хранения ОЯТ.

Соответствие диссертации Паспорту научной специальности.

Научные исследования, представленные в данной работе, направлены на выявление закономерностей, сопутствующих жизненному циклу таких объектов ядерной техники как тепловыделяющие сборки. В частности, в работе изучены закономерности изменения свойств материалов ТВС в результате их взаимодействия с реакторным излучением. Результаты исследования вносят вклад в обоснование надежности, безопасности, экологической приемлемости «сухого» хранения ОЯТ и технической поддержки нераспространения ядерных

материалов, что соответствует формуле специальности 05.14.03. –«Ядерные энергетические установки, включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации».

Апробация работы

Основные положения работы докладывались и обсуждались на следующих научных семинарах, совещаниях и конференциях: XI Междунар. конф. «Физика твердого тела» – «Наноматериалы для защиты промышленных и подземных конструкций», 9–12 июня 2010 г., г. Усть-Каменогорск, Казахстан; Междунар. конф. «Радиационное материаловедение и радиационные процессы», 10–15 сентября 2012 г., г. Алушта Украина; Междунар. конф. «Инновационные технологии и исследования, направленные на развитие «зеленой» энергетики и глубокую переработку продукции», 26–30 июня 2013 г., г. Усть-Каменогорск, Казахстан; Междунар. конф. «Ядерная и радиационная физика», 24–27 сентября 2013 г., г. Алматы, Казахстан; Междунар. конф. «Радиационно-термические эффекты и процессы в неорганических материалах», 10–16 ноября 2014 г., г. Томск; Всероссийская научная конф. «Фундаментальные и прикладные исследования в области точных и естественных наук», 2014 г., г. Новосибирск; 10-я Междунар. конф. «Ядерная и радиационная физика», 8–11 сентября 2015 г., г. Курчатов, Казахстан; Междунар. конф. «Перспективные материалы с иерархической структурой для новых технологий и надежных конструкций», 19–23 сентября 2016 г., г. Томск; 13-я Междунар. школа-конф. для молодых ученых и специалистов «Новые материалы – жизненный цикл материалов: старение и деградация материалов в процессе эксплуатации ЯЭУ», 17–21 октября 2016 г., г. Москва.; Междунар. науч. форум «Ядерная наука и технологии», 12–15 сентября 2017 г., г. Алматы, Казахстан; 15-я Междунар. школа-конф. «Новые материалы – Материалы инновационной энергетики: разработка, методы исследования и применение», 23–27 октября 2017 г., г. Москва; 16-я Междунар. школа-конф. для молодых ученых и специалистов «Новые материалы: толерантное ядерное топливо», 29 октября–02 ноября 2018 г., г. Москва; 17-я Междунар. школы-конф. для молодых ученых и специалистов «Новые материалы – перспективные технологии», 5–8 ноября 2019 г., г. Москва; XXIX Междунар. конф. «Радиационная физика твердого тела», 08–13 июля 2019 г., г. Севастополь;

7th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE-2020), September 14–26, 2020, Tomsk, Russia.

Личный вклад автора

В процессе выполнения исследований автор принимал непосредственное участие в постановке цели и задач исследования, подготовке и проведении научных экспериментов, обработке полученных результатов и формулировании выводов, написании публикаций по теме диссертации.

Публикации

По теме диссертации опубликовано 32 работы в научных журналах и сборниках трудов Международных и Российских конференций, совещаний и семинаров, включая 4 статьи, входящих в базы данных *WebofScience* и *Scopus*, 1 статью в рецензируемом журнале, рекомендованном ВАК РФ.

Объем и структура работы.

Диссертация состоит из введения, пяти разделов, выводов и библиографии. Работа изложена на 125 страницах, содержит 68 рисунков, 13 таблиц, список цитируемой литературы из 73 наименований и 1 приложение.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность исследования; сформулированы цель работы и решаемые задачи, указаны новизна и практическая значимость, изложены основные положения, выносимые на защиту.

Первая глава диссертации посвящена обзору имеющихся научных работ, отражающих основные физико-механические факторы, действующие на материалы ОТВС, а также условия длительного «сухого» хранения ОЯТ. Проведенный анализ показал, что в штатных условиях «сухого» хранения ОЯТ температура оболочки твэла не должна превышать 300–350 °С, но при условии осушения топлива допускается повышение температуры до 380–400 °С. Отмечено, что для достигнутых максимальных параметров эксплуатации твэлов в стационарных условиях, характерных для активной зоны реактора БН-600, максимальные напряжения в оболочке твэлов, вызванные силовым воздействием

внутреннего газа, не будет превышать 50–110 МПа без учета давления на стенки твэла распухающего топлива. Однако, если учесть изменение диаметра оболочки твэла, вызванного распуханием топлива и ползучестью конструкционного материала, а также взаимодействие «твэл-твэл» и «твэл-чехол ТВС», то величина растягивающих напряжений может быть значительно выше.

Выявлено, что минимальная величина растягивающих напряжений, сконцентрированных в материале оболочки твэла, которую необходимо учитывать при прогнозировании работоспособности материалов ОТВС при их хранении, должна быть $\sim 100\div 200$ МПа, включая контактное взаимодействие «твэл-твэл» и «твэл-чехол ТВС», но это значение определяется уровнем повреждающей дозы.

Наиболее частым механизмом повреждения материалов при эксплуатации и последующем хранении как оболочек твэлов, так и чехлов ТВС, являются коррозионные процессы, вызванные взаимодействием конструкционных материалов с топливом и теплоносителем, и как результат такого взаимодействия – утонение оболочек и появление на поверхности локальных участков коррозии, являющимися концентраторами напряжений и деформаций, которые в прогнозных оценках учесть невозможно. Кроме того, в прогнозах невозможно учесть изменение структурно-фазового состояния конструкционного материала после эксплуатации в активной зоне реактора.

На основании выполненного обзора определены температурно-силовые условия и методы исследования образцов конструкционных сталей аустенитного и ферритно-мартенситного классов, изготовленных из граней чехлов ОТВС реактора БН-350.

Во второй главе представлены исследованные материалы и описаны методы изучения структуры и свойств образцов реакторных сталей различных классов, рассмотренных в диссертационной работе.

Исследования проводились на образцах коррозионно-стойких сталей аустенитного 12X18H10T и 08X16H11M3 и ферритно-мартенситного 1X13M2БФР классов, вырезанных из граней чехловых труб отработавших тепловыделяющих сборок реактора БН-350 (таблица 1). Представлена схема вырезки образцов из граней чехловых труб и описаны методики изготовления и исследования образцов.

Таблица 1 – Условия облучения исследованных сталей

Сталь	Отметка, мм от ЦАЗ	Повреждающая доза, сна	Скорость на- бора дозы, $\times 10^{-8} \text{ с}^{-1}$	$T_{\text{обл}}, \text{ }^{\circ}\text{C}$
1X13M2БФР	«+ 500»	11	1,9	350
	«0»	24	4,3	325
08X16H11M3	«+ 500»	6	1,8	365
	«0»	16	4,8	337
12X18H10T	«+ 900»	3	0,5	400
	«0»	15	4,0	337

В качестве основных методов исследования выбраны испытания на одноосное растяжение и ползучесть в условиях имитирующих штатные и критические условия длительного «сухого» хранения. Механические испытания проводились на универсальной испытательной машине «LR5KPlus» со скоростью деформации 5 мм/мин.

Методика проведения температурных испытаний состояла в следующем. Образец устанавливался в захваты испытательной машины, в трубчатой электропечи нагревался до температуры испытания и выдерживается в течение 1 ч. Нагрев образца производился в ненагруженном состоянии. После нагрева при заданной температуре к образцу прикладывали растягивающие напряжения. Колебания температуры рабочей части образца не превышали $\pm 2^{\circ}\text{C}$; колебания нагрузки не превышали $\pm 10 \text{ Н}$.

Структурные изменения, протекавшие в исследуемых сталях после испытаний, фиксировали методом оптической металлографии, используя металлографический микроскоп «Axio Observer.D1m». Для выявления микроструктурных особенностей исследуемых материалов образцы подвергались химическому травлению в растворах, широко используемых в металлографической практике применительно к сталям исследованных типов.

В третьей главе изложены результаты экспериментальных исследований влияния облучения в реакторе БН-350 на микроструктуру и механические свойства конструкционных сталей чехлов ТВС. В данной главе приведены также закономерности изменения микроструктурных особенностей и механических характеристик исследуемых сталей, выявленные после испытаний на одноосное

растяжение как при комнатной температуре, так и при температурах, соответствующих штатным (350 °С) и критическим (450 °С) условиям «сухого» хранения ОТВС.

Испытания на одноосное растяжение необлученных и облученных сталей 12Х18Н10Т, 08Х16Н11М3 и 1Х13М2БФР показали, что облучение в реакторе приводит к их упрочнению (таблица 2), что проявляется в повышении характеристик прочности с увеличением повреждающей дозы. При этом, с увеличением повреждающей дозы, наблюдается снижение величины относительной деформации сталей.

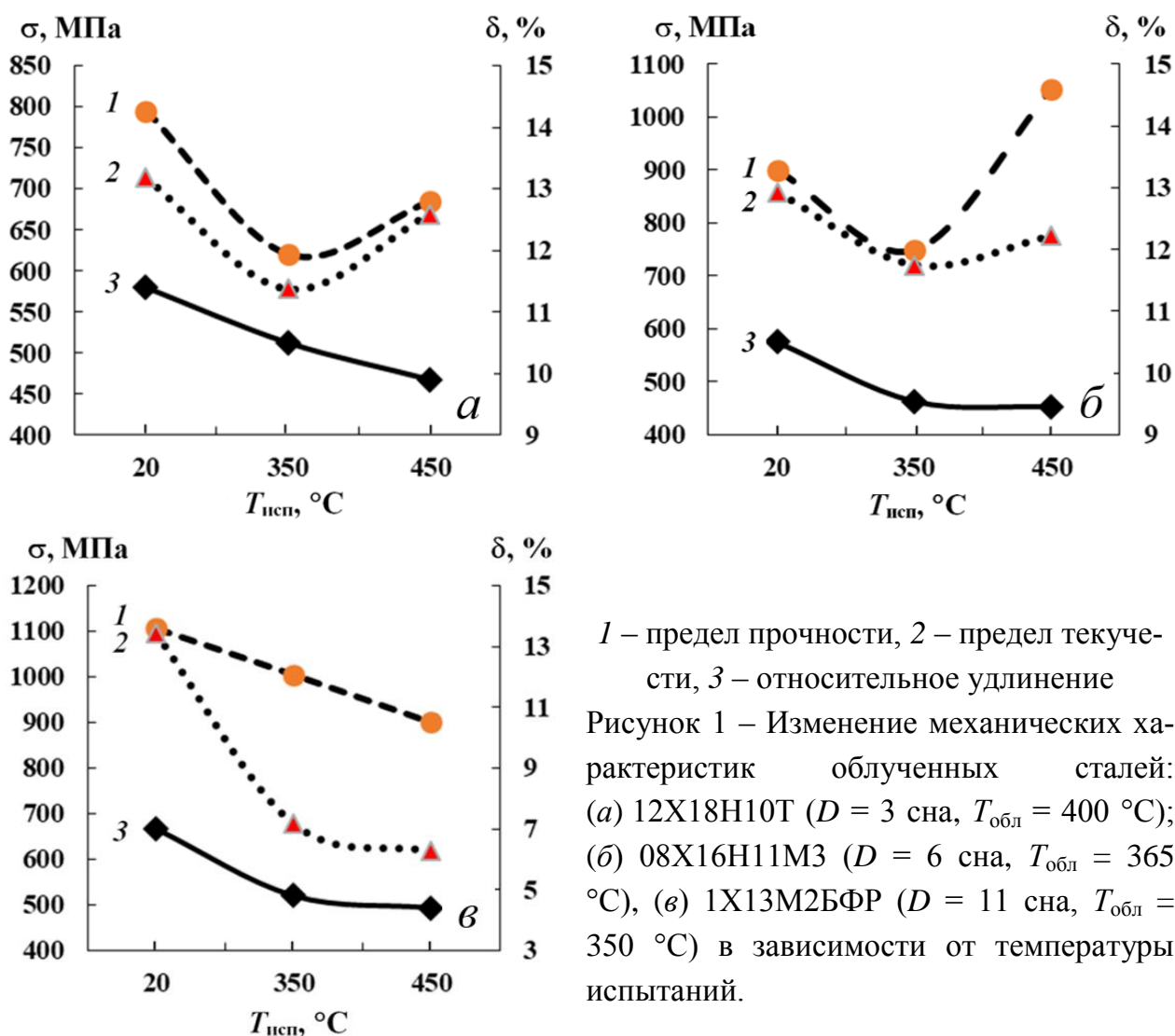
Таблица 2 – Механические свойства необлученных и облученных сталей 12Х18Н10Т, 08Х16Н11М3 и 1Х13М2БФР, полученные при комнатной температуре испытаний.

Марка стали	Повреждающая доза, сна	$\sigma_{в}$, МПа	$\sigma_{0,2}$, МПа	δ , %
12Х18Н10Т	0	550 ± 30	–	35 ± 2
	3	795 ± 40	715 ± 35	11,5 ± 0,5
	15	1010 ± 50	980 ± 50	6,0 ± 0,3
08Х16Н11М3	0	530–620*	245–290*	50*
	6	900 ± 5	857 ± 7	10,5 ± 0,3
	16	1190 ± 5	910 ± 7	5,4 ± 0,3
1Х13М2БФР	0	804 ± 10	729 ± 7	12,8 ± 0,1
	11	1005 ± 8	678 ± 5	4,8 ± 0,1
	24	1507 ± 5	1367 ± 7	6,5 ± 0,2

* Согласно ТУ 14-3-1477-87

Повышение температуры испытаний до температур, характерных для условий «сухого» хранения, приводит к заметному изменению механических свойств облученных сталей (рисунок 1). На представленных на рисунке 1 зависимостях видно, что увеличение температуры испытаний до 350 °С привело к снижению механических характеристик, что согласуется с общепринятыми представлениями о том, что с увеличением температуры испытаний характеристики прочности уменьшаются. Однако при повышении температуры испытаний сталей аустенитного класса до 450 °С (рисунки 1, а и б) наблюдается об-

ратный эффект – пределы прочности σ_B и текучести $\sigma_{0,2}$ снова возрастают по сравнению с испытанием при 350 °С. При этом пластичность, характеризуемая относительным удлинением δ , с повышением температуры испытаний снижается дальше (кривые 3 на рисунке 1), хотя, как известно, для необлученных сталей при температурах 300 °С и выше характерно возрастание пластических свойств с повышением температуры.



Следует отметить, что у стали 1Х13М2БФР такого эффекта не наблюдается – с повышением температуры снижаются и прочность, и пластичность.

Схожесть результатов, полученных при испытаниях на одноосное растяжение, позволяет предполагать об аналогичности протекающих процессов в объеме аустенитных сталей при примерно одинаковых условиях облучения и идентичных условиях послереакторных испытаний.

Металлографические исследования облученных и необлученных сталей показали, что эксплуатация сталей аустенитного класса в реакторе БН-350 приводит к образованию в структуре материала большого количества карбидных включений и снижению размера аустенитных зерен (стали 12Х18Н10Т и 08Х16Н1М3), и проявлению эффекта двойникования крупных зерен аустенита (сталь 08Х16Н1М3). Средний размер карбидов, образовавшихся при облучении, составляет ~ 2 мкм в стали 12Х18Н10Т и ~ 0,5 мкм – в стали 08Х16Н1М3. Облучение стали 12Х18Н10Т до больших повреждающих доз (15 сна) приводит к очищению границ зерен от карбидных включений.

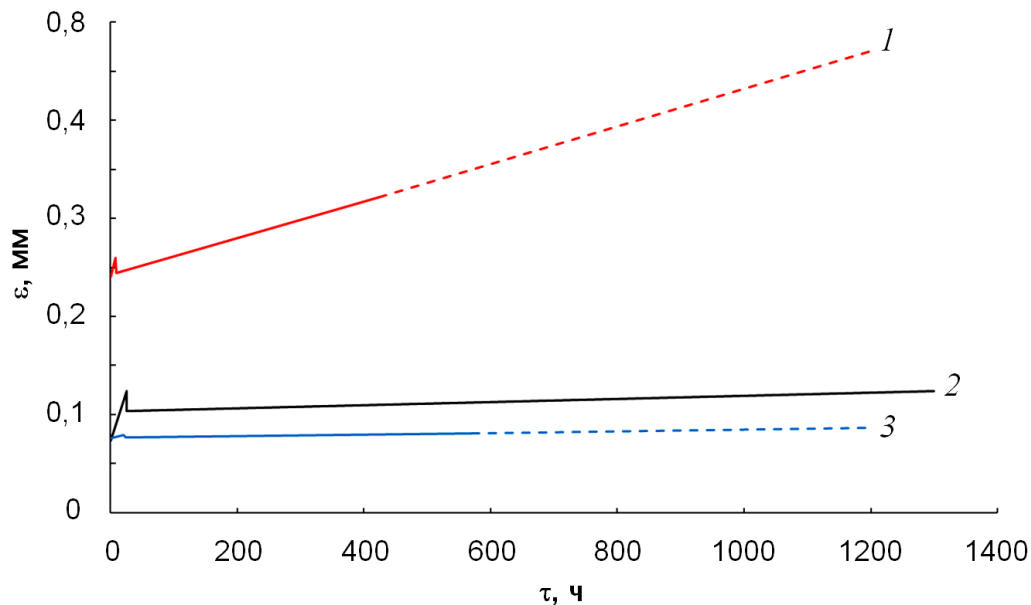
Облучение стали 1Х13М2БФР, имеющей дуплексную структуру, состоящую из зерен феррита и сорбита, приводит к увеличению содержания сорбитной составляющей, т.е. увеличению концентрации карбидных включений. При этом сорбитные образования разделяются и обособливаются в феррите, мелкие карбидные частицы располагаются ближе к границам фаз, в то время как крупные включения концентрируются ближе к центру зерен.

Микроструктурные исследования, проведенные после механических испытаний, выявили, что упрочнение аустенитных сталей обусловлено наличием карбидных выделений как в зерне, так и по его границам, а также двойникованием и снижением размера зерен. Последнее увеличивает протяженность межзеренных границ и приводит к повышению прочности, что согласуется с классической теорией упрочнения материалов. Упрочнение стали 1Х13М2БФР после облучения в реакторе БН-350 обусловлено увеличением содержания сорбитной составляющей структуры, в составе которой присутствует большое количество карбидов, являющихся эффективными стопорами для дислокаций.

Изучение микроструктуры исследуемых сталей после механических испытаний при 350 и 450 °С выявило, что упрочнение аустенитных сталей при температуре 450 °С обусловлено процессами деформационного упрочнения, т.е. проявлением эффекта двойникования аустенитных зерен, а также повышением концентрации карбидных выделений как и ферритно-мартенситной стали.

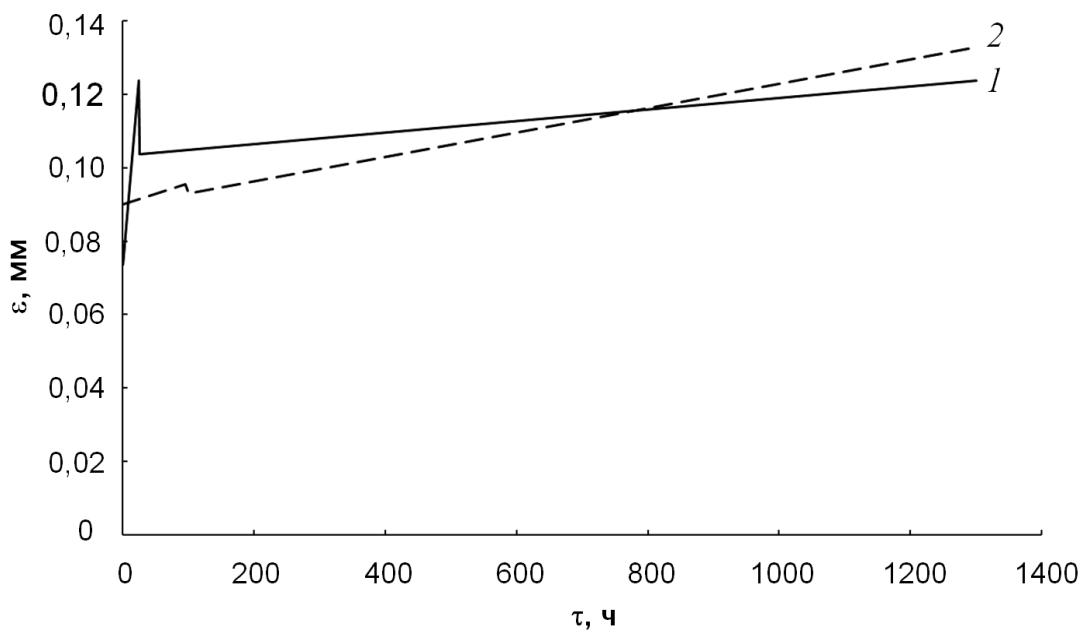
В четвертой главе приведены результаты исследований влияния облучения на ползучесть сталей чехлов ТВС БН-350 и микроструктурные изменения необлученных и облученных образцов сталей после испытаний на ползучесть. Показано что ползучесть конструкционных материалов ТВС реактора БН-350 как в облученном, так и в необлученном состояниях при штатных условиях

длительного «сухого» хранения ($T_{\text{исп}} = 350 \text{ }^{\circ}\text{C}$ и $P_{\text{исп}} = 100 \text{ Н}$) носит стадийный характер. На диаграммах испытаний как для необлученного, так и облученных материалов наблюдаются «начальная», «переходная» и «установившаяся» стадии ползучести (рисунки 2–5).



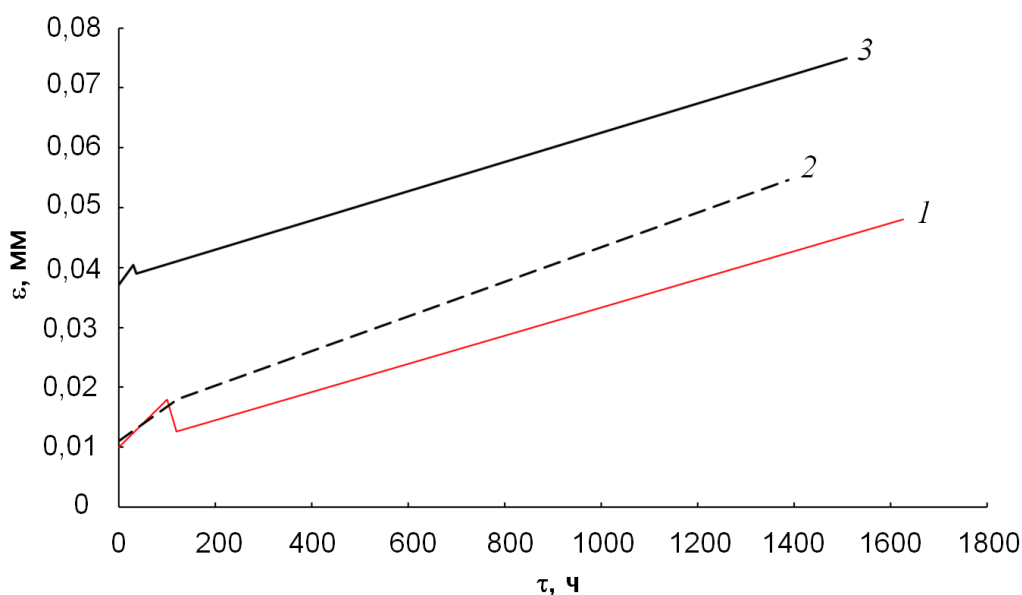
1 – необлученная сталь; 2 – $D = 3$ сна, $T_{\text{обл}} = 400 \text{ }^{\circ}\text{C}$; 3 – $D = 15$ сна, $337 \text{ }^{\circ}\text{C}$

Рисунок 2 – Диаграммы испытаний на ползучесть стали 12X18H10T, облученной до различных повреждающих доз; $P = 100 \text{ Н}$, $T_{\text{исп}} = 350 \text{ }^{\circ}\text{C}$ (пунктиром построено продолжение графика по полученным результатам).

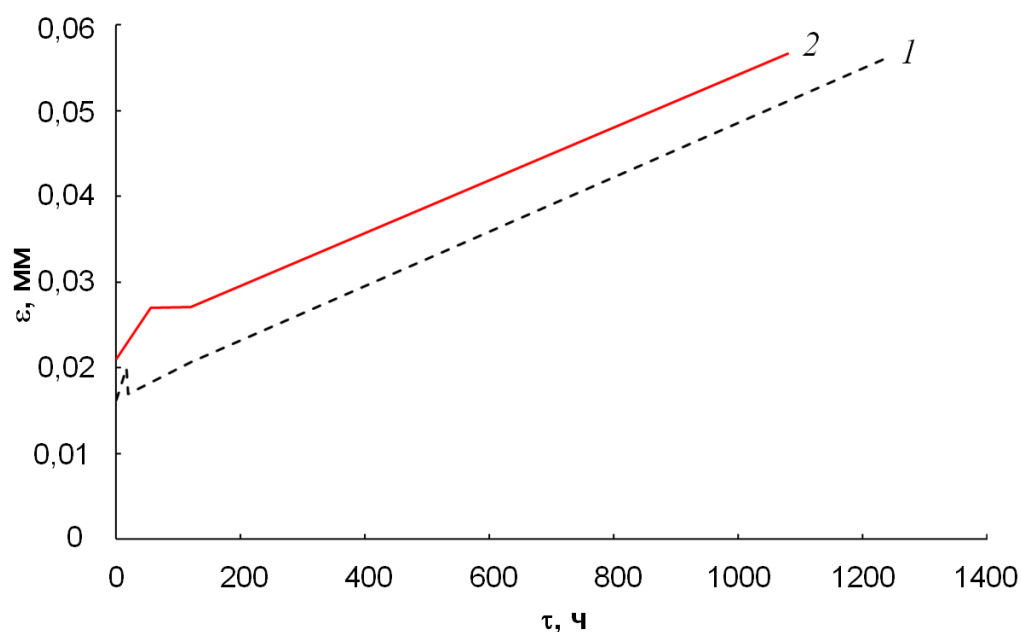


1 – $T_{\text{исп}} = 350 \text{ }^{\circ}\text{C}$; 2 – $T_{\text{исп}} = 450 \text{ }^{\circ}\text{C}$

Рисунок 3 – Диаграммы испытаний на ползучесть стали 12X18H10T, облученной до повреждающей дозы 3 сна, при $P = 100 \text{ Н}$.



1 – $P = 100$ Н, $T_{\text{исп}} = 350$ °С; 2 – $P = 100$ Н, $T_{\text{исп}} = 450$ °С; 3 – $P = 450$ Н, $T_{\text{исп}} = 350$ °С
 Рисунок 4 – Диаграммы испытаний на ползучесть стали 08X16H11M3, облученной до повреждающей дозы 6 сна.



1 – 11 сна; 2 – 24 сна

Рисунок 5 – Диаграммы испытаний на ползучесть стали 1X13M2БФР, облученной до различных повреждающих доз, при $P = 100$ Н и $T_{\text{исп}} = 350$ °С.

Начальная стадия характеризуется большей скоростью ползучести и начинается сразу после выхода на рабочую нагрузку. Вероятно, это так называемое явление упругого последействия, когда после выхода на рабочую нагрузку деформации продолжают возрастать. Проявление начальной стадии на кривых ползучести обычно наблюдается, когда к образцу прикладываются нагрузки

ниже предела текучести. Накопление деформаций за время начальной стадии, в конечном счете, упрочняет материал, что приводит к снижению скорости ползучести в дальнейшем. Одновременно с этим одна часть обратимых деформаций переходит в пластическую, а другая исчезает. На кривых ползучести это проявляется в виде переходной стадии, где деформации принимают отрицательное значение. По завершении переходной стадии скорость ползучести стали становится постоянной, наступает установившаяся стадия ползучести. При этом на длительность стадий ползучести оказывают влияние величина прикладываемых напряжений, температура испытаний и уровень повреждающей дозы.

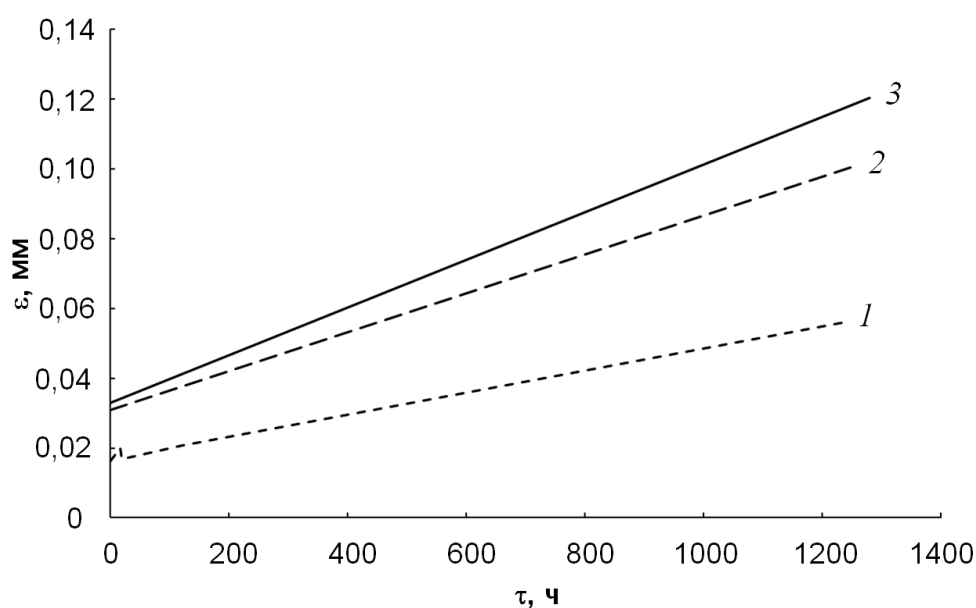
На диаграммах испытаний на ползучесть облученной стали 12X18H10T, полученных при разных температурах (см. рисунок 3), видно, что с увеличением температуры испытаний от 350 до 450 °С характер кривой ползучести сохраняется: так же наблюдаются начальная, переходная и установившаяся стадии ползучести. Однако, при $T_{исп} = 450$ °С скорость ползучести на начальной стадии снижается, а ее длительность возрастает.

Снижение скорости ползучести и увеличение длительности ее начальной стадии при большей температуре испытания, по-видимому, вызвано как собственно температурой испытания, так и более высоким значением предела текучести $\sigma_{0,2}$ при 450 °С (см. рисунок 1,а), т.е. чем выше значение $\sigma_{0,2}$, тем дольше материал проявляет способность к сопротивлению пластической деформации. Также необходимо отметить, что снижение скорости ползучести стали на установившейся стадии, по сравнению с начальной, невелико. По этой причине за одинаковый промежуток времени деформация ползучести стали при температуре 450 °С выше чем деформация ползучести при 350 °С.

Ползучесть аустенитной стали 08X16H11M3 имеет схожий характер с ползучестью стали 12X18H10T. На представленных на рисунке 4 первичных диаграммах ползучести облученной стали 08X16H11M3 видно, что для данной стали также характерна стадийность процесса ползучести. С повышением температуры испытаний до 450 °С скорость ползучести на установившейся стадии повышается. При этом переходной стадии ползучести, характеризующейся сокращением образца, не наблюдается. В свою очередь, увеличение нагрузки до 450 Н при одинаковых температурах испытаний приводит к существенному увеличению деформации выхода на рабочую нагрузку.

На диаграммах ползучести ферритно-мартенситной стали 1Х13М2БФР испытанной при нагрузке 100 Н и температуре 350 °С, как и для аустенитных сталей при аналогичных условиях, присутствуют начальная, переходная и установившаяся стадии ползучести (рисунок 5). Однако облучение до большей повреждающей дозы приводит к увеличению длительности начальной и переходной стадий.

С увеличением нагрузки до 450–550 Н, которые соответствуют напряжениям на условном пределе текучести и выше, стадийность ползучести не наблюдается, и при этом скорость ползучести стали возрастает (рисунок 6).



1 – $P = 100$ Н; 2 – $P = 450$ Н; 3 – $P = 550$ Н

Рисунок 6 – Диаграммы испытаний на ползучесть стали 1Х13М2БФР, облученной до 11 сна, при $T_{исп} = 350$ °С и различных нагрузках.

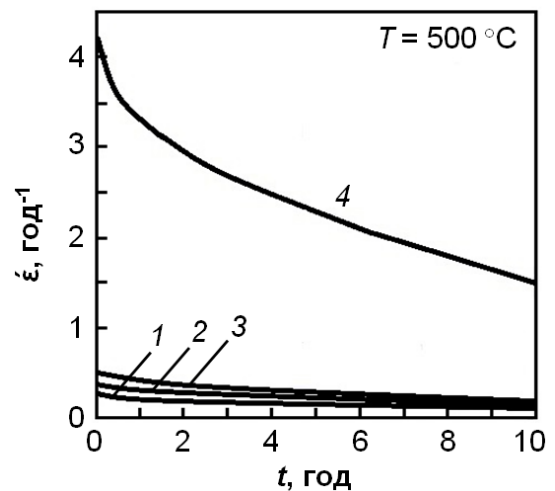
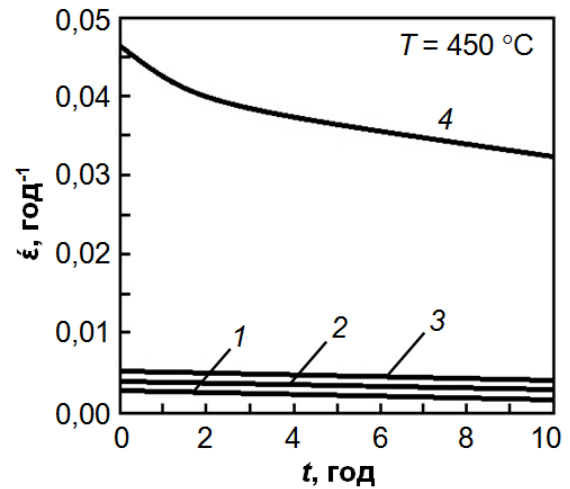
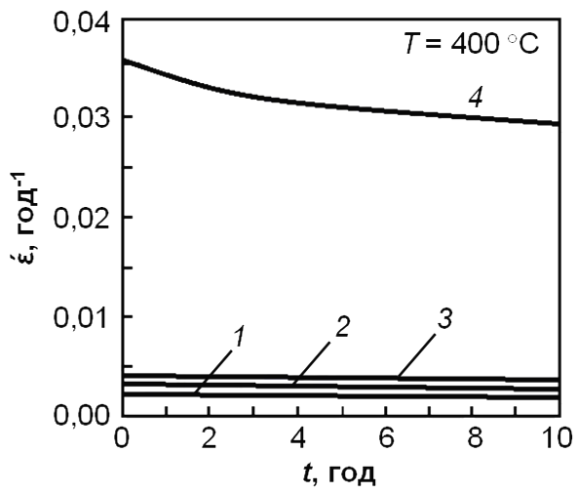
Проведенные после испытаний на ползучесть структурные исследования показали, что при ползучести в штатных условиях «сухого» хранения в аустенитных сталях активно протекают процессы двойникования и выделения вторичных фаз, а при напряжениях, соответствующих условному пределу текучести и выше, снижается размер зерен аустенита, что приводит к деформационному упрочнению сталей. Деформационное упрочнение ферритно-мартенситной стали при ползучести в штатных условиях «сухого» хранения обусловлено образованием большого количества дисперсных выделений как в сорбитной, так и в ферритной составляющих структуры.

В пятой главе отражены результаты расчетных исследований формоизменения оболочек твэлов для оценки остаточного ресурса материала оболочек отработавших твэлов при пострадиационном старении, т.е., для условий длительного хранения ОЯТ.

В основу модели положены расчеты напряжений в оболочках отработавших твэлов. Основным лимитирующим процессом, определяющим остаточный запас прочности материала твэла, в модели полагается пострадиационная ползучесть и связанные с ней изменения критических параметров: предельного значения прочности и максимального значения относительной деформации. Как правило, в оценочных расчетах используют эмпирическую зависимость скорости ползучести, основанную на аппроксимации экспериментальных данных. В нашем случае имеются ограниченные экспериментальные данные по скорости ползучести облученных оболочечных сталей при одноосной деформации, ограничивающиеся высокими напряжениями и малым набором температур. В частности, получены данные для температур 400 и 450 °С, напряжений $\sigma_{zz} = 166$ и 300 МПа. На имеющемся массиве данных невозможно корректно представить зависимость скорости ползучести от температуры и напряжения. Поэтому в основу модели положена дислокационная модель, учитывающая скольжения элементов дислокационной сетки, т.е. под действием напряжений возникает направленное движение ансамбля дислокаций, что и обуславливает ползучесть материала. В свою очередь расчет скорости ползучести по модели скольжения-переползания зависит от ряда параметров: коэффициентов диффузии вакансий и междоузельных атомов, их равновесных концентраций и др. В модели также учитывается эволюция ансамблей сформировавшихся под облучением дефектов: сетки дислокаций, междоузельные петли Франка, вакансионная и газовая пористость. Вклад межзеренной ползучести не учитывается. Отметим, что полученные в данном разделе результаты расчетов скорости ползучести с типичными для коррозионно-стойких конструкционных сталей параметрами, достаточно хорошо совпали с имеющимися экспериментальными данными.

На рисунке 7 представлены зависимости скорости ползучести от времени для температур пострадиационного старения при $T = 400, 450$ и 500 °С и напряжениях $\sigma_{zz} = 10, 15, 20$ и 166 МПа. Характерной чертой зависимостей на этих

графиках является рост скорости ползучести с ростом температуры и напряжений.



1 – $\sigma_{zz} = 10$ МПа, 2 – 15 МПа, 3 – 20 МПа,
4 – 166 МПа

Рисунок 7 – Зависимость скорости ползучести от времени при разных температурах.

Оценочные расчеты целостности цилиндра, имитирующего оболочку твэла реактора БН-350, выполненные в рамках разработанного подхода, показали, что напряжения в интервале температур штатного хранения ОЯТ не превосходят предела прочности стальной оболочки цилиндра. Относительная деформация также не превосходит принятого для безопасного обращения с ОЯТ двухпроцентного критерия. Наиболее важным результатом расчета является следующее. Зависимость скорости пострadiaционной ползучести от времени носит немонотонный характер. На начальном этапе, продолжительность которого может достигать 10–20 лет, скорость ползучести возрастает, но в дальнейшем выходит на насыщение и возможно даже ее уменьшение. Поэтому для консервативных (максимальных) оценок целостности оболочки ОЯТ можно брать максимальное значение скорости ползучести и, если полученные значения на-

пряжений и относительных деформаций не будут превышать принятых критериев, то разрушения оболочки не должно происходить. Необходимо отметить, что это справедливо только в отношении деградации материала оболочки по механизму пострadiационной ползучести, но в реальной ситуации материал оболочки подвержен коррозии, преобразованиям структурно-фазового состояния, приводящих к изменению толщины оболочки твэлов и другим факторам, что нужно учитывать при оценках деградации свойств материалов оболочек отработавших твэлов при их длительном хранении.

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

По результатам проведенных экспериментальных исследований, направленных на выявление закономерностей термической и радиационной ползучести реакторных сталей разного класса применительно к проблеме длительного хранения отработавших тепловыделяющих сборок, можно сделать следующие выводы.

1. В результате проведенных испытаний на одноосное растяжение определены механические характеристики необлученных и облученных аустенитных сталей 12X18H10T, 08X16H11M3 и ферритно-мартенситной стали 1X13M2БФР– материалов чехла ТВС реактора БН-350, в температурных условиях, характерных для «сухого» хранения ОЯТ.

2. Обнаружено, что при критической температуре длительного «сухого» хранения (450 °С) предел прочности и условный предел текучести облученных аустенитных сталей выше, чем при температуре 350 °С. По результатам проведенных структурных исследований установлено, что упрочнение обусловлено деформационным и дисперсионным упрочнением, т.е. проявлением эффекта двойникования аустенитных зерен и увеличением концентрации карбидных выделений в аустенитных сталях.

3. По результатам проведенных экспериментальных испытаний на ползучесть определены закономерности термической и радиационной ползучести необлученных и облученных в реакторе БН-350 сталей аустенитного и ферритно-мартенситного классов.

4. Показано, что процесс ползучести облученных в реакторе БН-350 ферритно-мартенситной 1X13M2БФ, аустенитных 12X18H10T и 08X16H11M3 ста-

лей, в температурно-силовых условиях «сухого» хранения ОЯТ ($T = 350\text{ }^{\circ}\text{C}$, $P = 100\text{H}$) носит стадийный характер. Длительность стадий радиационной ползучести зависит как от температурно-силовых условий, так и от состояния материала после эксплуатации, т.е. от величины повреждающей дозы. Структурные изменения, протекающие в материалах при ползучести, схожи с изменениями, выявленными после испытаний на одноосное растяжение при идентичных условиях.

5. На основе выполненных расчетов, проведенных в рамках предложенной в работе модели, показано, что в условиях длительного «сухого» хранения скорость ползучести конструкционных материалов ОТВС при неизменных условиях (температура, напряжение) выходит на насыщение за период ~ 20 лет и в дальнейшем имеет тенденцию к затуханию.

6. Установлено, что в период запланированного срока «сухого» хранения (планировалось в течение ~ 50 лет) материал оболочки ОТВС реактора на быстрых нейтронах (БН-350) сохраняет целостность, если деградация оболочки отработавшего твэла происходит только по механизму ползучести.

ОСНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. Changes in the structure of irradiated steel 0.12C18Cr10NiTi caused by plastic deformation at different temperatures / V. Firsova, S. Kislitsin, L. Dikova, A. Dikov // In: Proc. of 7th Intern. Congress on Energy Fluxes and Radiat. Eff. – 19th Intern. Conf. on Radiat. Phys. And Chemistry of Condensed Matter, Tomsk, 2020. – P. 959–963.

2. Dikov A.S., Chernov I.I., Kislitsin S.B. Influence of the test temperature on the creep rate of 0.12C18Cr10NiTi structural steel irradiated in the BN-350 reactor // Inorganic Materials: Applied Research. – 2018. – V. 9. – No. 3. – P. 357–360.

3. Dikov A.S., Kislitsin S.B., Chernov I.I. Effect of test temperature on mechanical properties of austenitic 0.12C18Cr10NiTi and 0.08C16Cr11Ni3Mo steels irradiated by fast neutrons in the BN-350 reactor // Defect and Diffusion Forum: Defects and Diffusion Phenomena in Materials for Nuclear Technologies. – 2017. – V. 375. – P. 134–138.

4. Влияние облучения быстрыми нейтронами на механические свойства ферритно-мартенситной стали X13M2БФР / А.С. Диков, А.С. Ларионов,

С.Б. Кислицин, И.И. Чернов // В сб.: VII Межд. конф. «Деформация и разрушение материалов и наноматериалов», г. Москва, 7–10 ноября 2017 г. – М: ИМЕТ РАН. – 2017. – С. 757–758.

5. Диков А.С., Чернов И.И., Кислицин С.Б. Влияние температуры испытаний на скорость ползучести конструкционной стали 12Х18Н10Т, облученной в реакторе БН-350 // Физика и химия обработки материалов. – 2017. – № 3. – С. 5–11.

6. Changes in physical and mechanical properties of ferritic-martensitic 13Cr2MoNbVB steel irradiated by fast neutrons / A.S. Dikov, A.S. Larionov, S.B. Kislitsin, I.I. Chernov // AIP Conference Proceedings. – 2016. – V. 1783. – P. 020040-1–020040-5.

7. Влияние температуры испытаний на скорость ползучести конструкционной стали 12Х18Н10Т облученной быстрыми нейтронами в реакторе БН-350 / А.С. Диков, А.С. Ларионов, Д.А. Сатпаев, С.Б. Кислицин // Вестник НЯЦ РК. – 2016. – В.1(65). – С. 47–50.

8. Radiation thermal processes in Cr13Mo2NbVB steel – the material of the fuel assembly shell in reactor BN-350 under mechanical tests / A.S. Larionov, A.S. Dikov, V.P. Poltavceva et al.// Materials Science and Engineering. – 2015. – V. 81, 012035.

9. Исследование физико-механических свойств конструкционной стали 1Х13М2БФР, облученной быстрыми нейтронами в реакторе БН-350 / А.С. Ларионов, С.Б. Кислицин, А.С. Диков, Д.А. Сатпаев // В сб.: Труды конф. «Фундаментальные и прикладные исследования в области точных и естественных наук», 17 июня 2014 г., г. Новосибирск, 2014. – С. 28–34.

10. Влияние структуры на механические свойства облученных аустенитных реакторных сталей / Д.А. Сатпаев, А.С. Диков, А.П.Горцев, А.Ю. Нестерова // Вестник НЯЦ РК. – 2013. – В. 3(55) – С. 104–110.

11. Испытания на длительную прочность облученной и необлученной стали 12Х18Н10Т / А.С. Диков, В.В. Киреев, С.Б. Кислицин, А.Ю. Нестерова // В сб.: Матер. Междунар. симпозиума «Наноматериалы для защиты промышленных и подземных конструкций» и XI Междунар. конф. «Физика твердого тела», 9–12 июня 2010 г., г. Усть-Каменогорск: ВКГТУ, 2010. – С. 595–600.