

УДК 621.039.546:541.183.5:546.291

## Изучение выделения гелия из конструкционных материалов в процессе нагрева

СКОРОВ Д. М., АГАПОВА Н. П., ДАШКОВСКИЙ А. И., СОКУРСКИЙ Ю. Н., ЗАЛУЖНЫЙ А. Г.,  
СТОРОЖУК О. М., ОНУФРИЕВ В. Д., АФРИКАНОВ И. Н.

Известно, что под действием нейтронного облучения в конструкционных материалах образуются гелий и водород в результате прохождения соответственно  $(n, \alpha)$ - и  $(n, p)$ -реакций на определенных изотопах элементов, входящих в состав этих материалов. Образование газов связывается с изменением механических и физических свойств материалов, в частности с радиационным высокотемпературным охрупчиванием и распуханием.

В настоящей работе проводилось изучение поведения гелия в никеле и стали 0X16H15M3B в процессе отжига.

Исследовавшиеся образцы никеля (99,99%) и стали 0X16H15M3B (фольга толщиной  $\sim 100$  мкм с рекристаллизованным зерном размером 30—50 мкм) были насыщены гелием на магнитной масс-сепарационной установке ИЛУ-100 ФЭИ в результате бомбардировки фольги исследуемых материалов  $\alpha$ -частицами с энергией 70 кэВ при плотности рабочего тока 1 мкА/см<sup>2</sup> до дозы  $\sim 3 \cdot 10^{16}$  част./см<sup>2</sup>. Температура образца в процессе облучения не превышала 100 °С. Распределение гелия по толщине образцов, обработанных на магнитной масс-сепарационной установке, соответствует распределению Гаусса [1]. Согласно расчетам, насыщенный гелием слой в образцах рассматривавшихся материалов располагался от поверхности на расстоянии, значительно меньшем величины зерна.

На циклотроне ИАЭ им. И. В. Курчатова образцы насыщались гелием в результате бомбардировки фольги стали 0X16H15M3B  $\alpha$ -частицами с энергией до 40 МэВ. Для получения равномерно насыщенных гелием образцов указанного сплава между источником ионов и насыщавшимися фольгами помещался вращающийся диск с подобранными фильтрами. Температура образцов в процессе облучения не превышала 70 °С. Расчетная концентрация гелия в облученных образцах оказалась равной  $\sim 10^{-2}$  ат. %.

Изучение выделения гелия из никеля и стали 0X16H15M3B проводилось с помощью специально сконструированной установки [2], работа

которой основана на масс-спектрометрическом определении парциального давления инертного газа, выделившегося к тому или иному моменту времени из отжигаемого в вакууме исследуемого образца. Однако, в отличие от описанной ранее методики исследования газовой выделенности в процессе изотермического отжига [2], в настоящей работе использовалась методика изучения кинетики выделения гелия из конструкционных материалов при нагреве с постоянной скоростью. Равномерный нагрев осуществлялся изменением по заданной программе напряжения, подаваемого на нагреватель. Для поддержания в отжиговой камере необходимого вакуума в процессе эксперимента одновременно использовались геттерно-ионный и электроразрядный насосы. Поэтому откачка выделяющегося гелия в рабочем интервале давлений проводилась практически с постоянной скоростью, а полученные при этом кинетические кривые газовой выделенности, естественно, характеризуют только изменение скорости выделения гелия из материала: подъем означает, что скорость выделения выше скорости откачки, спад — скорость откачки превышает скорость выделения. Для каждого материала при скорости нагрева 7 и 15 °С/мин проводилось по три эксперимента с целью установить повторяемость полученных данных.

Выделение гелия из образца стали 0X16H15M3B, насыщенного инертным газом

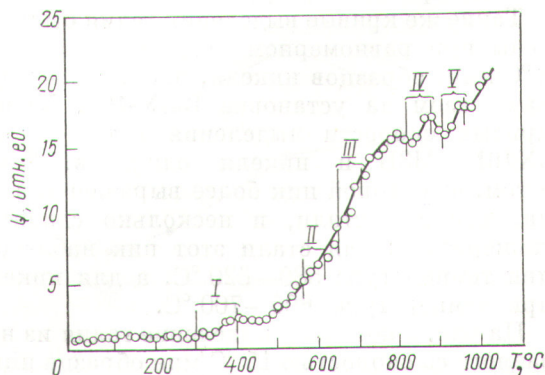


Рис. 1. Кинетика выделения гелия из образца стали 0X16H15M3B

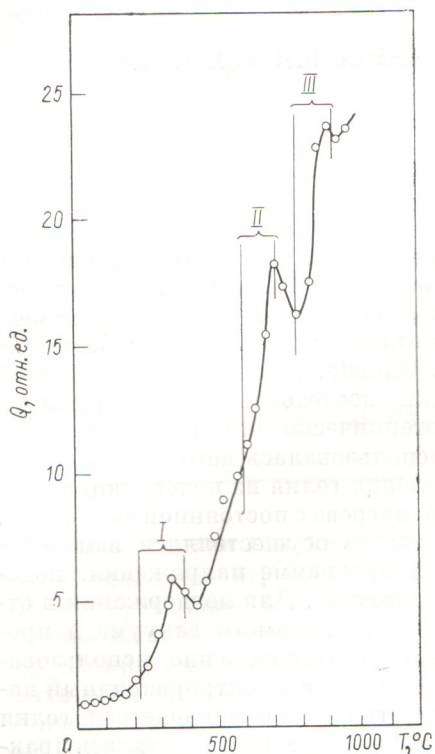


Рис. 2. Кинетика выделения гелия из образца никеля

на установке ИЛУ-100, при нагревании образца со скоростью 7 °С/мин показано на рис. 1.

Можно обнаружить пять пиков скорости выделения гелия. Заметим, что характеристическая температура пиков отличалась в экспериментах не более чем на 20–25 °С. Первый пик скорости газовой выделению (I), как видно из рис. 1, расположен в низкотемпературной области от 300 до 400 °С; остальные пики (II – V) наблюдаются при температуре выше 600 °С.

Такие же кривые выделения гелия были получены при равномерном нагреве (со скоростью 7 °С/мин) образцов никеля, насыщенных инертным газом на установке ИЛУ-100. Характер кривых скорости выделения гелия из стали 0X16H15M3B и никеля одинаков. Разница в том, что второй пик более выражен для никеля, чем для стали, и несколько сдвинут по температуре: для стали этот пик наблюдается при температуре 580–620 °С, а для никеля — при температуре 600–700 °С.

На рис. 2 показано выделение гелия из нагреваемого со скоростью 15 °С/мин образца никеля, насыщенного инертным газом на магнитной масс-сепарационной установке ИЛУ-100. Анало-

гичная кривая получена и для нагреваемого с той же скоростью образца стали 0X16H15M3B, насыщенного инертным газом на той же установке. В отличие от кривых выделения гелия из образцов стали и никеля при скорости нагрева 7 °С/мин, эти кривые имеют только три пика. Эти кривые по своему характеру совпадают с кривыми выделения гелия из аналогичных материалов при скорости нагрева 20 °С/мин [3]: наблюдаются три пика скорости газовой выделению (один — в низкотемпературной области ~300 °С, два — при температуре более 600 °С). Этого и следовало ожидать, так как в настоящей работе и работе [3] равномерный нагрев рассматриваемых материалов проводился практически с одинаковой скоростью. Следует заметить, что выбор оптимальной скорости нагрева исследуемых образцов — довольно сложная экспериментальная задача, так как при малой скорости пики сильно «размазаны» по температурной шкале, а при высокой скорости наблюдается как бы наложение соседних пиков.

Исследовалось также выделение гелия из образцов стали 0X16H15M3B, равномерно насыщенных инертным газом на циклотроне. На рис. 3 показано выделение гелия из подобного образца стали в процессе равномерного нагрева со скоростью 7 °С/мин. Выделение гелия из таких образцов имеет тот же характер, что и при равномерном нагреве образцов данной стали, насыщенного газом в результате бомбардировки низкоэнергетичными ионами гелия на установке ИЛУ-100: один пик скорости выделения гелия (I) отчетливо обнаруживается в низкотемпературной области (280–380 °С), остальные — в высокотемпературной (II – VI). В данном случае в высокотемпературной области наблюдается на один максимум больше.

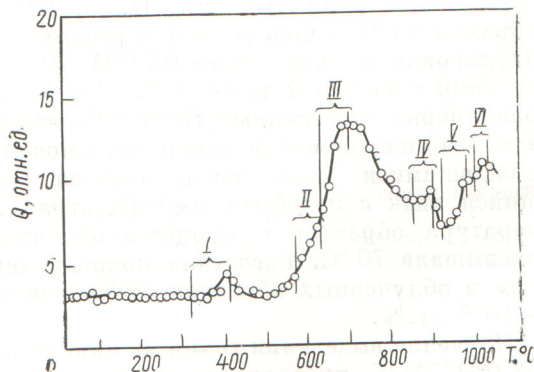


Рис. 3. Кинетика выделения гелия из образца стали 0X16H15M3B, насыщенного газом на циклотроне (~0,01 ат. % He)

Появление пика VI можно объяснить влиянием границ на распределение газа в материале, так как при облучении стали на циклотроне насыщался ионами гелия весь объем образца, а не узкий приповерхностный слой, когда для облучения использовалась магнитная масс-сепарационная установка.

Анализируя результаты работ [3—7], можно предположить, что выделение гелия из исследуемых материалов в процессе равномерного нагрева характеризуется несколькими стадиями.

Проведенные с помощью электронного микроскопа EM-300 исследования аналогичных образцов никеля и стали 0X16H15M3B, отожженных после облучения низкоэнергетичными ионами гелия при температуре 300, 400 и 500 °C, показали, что гелиевая пористость в материалах при этих условиях не образуется. Согласно электронно-микроскопическим данным, в насыщенных ионами гелия никеле и стали при повышении температуры вплоть до 500 °C черные точки и малые дислокационные петли, наблюдаемые в исходном состоянии, превращаются в хорошо различимые большие дислокационные петли, которые, как было показано в работе [8], являются петлями межузельных атомов. Размер этих петель при повышении температуры отжига увеличивается, а их концентрация понижается (рис. 4). Надо полагать, что после облучения основная часть введенного в образец гелия находится в метастабильном твердом растворе или образует комплексы, размер которых по электронно-микроскопическим оценкам ~10 Å. Возможно, что часть атомов гелия остается в виде внедренных атомов, которые обладают более высокой подвижностью и выходят из образца, создавая первый пик газовыделения (см. рис. 1 и 3). Возможно также, что некоторая часть внедренных атомов гелия образует атмосферы Коттрелла вблизи дислокационных петель. Это подтверждается тем, что первые пузырьки появляются обычно на дислокационных линиях. Резкий рост петель и падение концентрации их приводит к сокращению суммарной длины петлевых дислокаций и к уменьшению концентрации мест закрепления атомов гелия. Освободившиеся при этом атомы гелия выходят из образца, обуславливая первый пик газовыделения в соответствующем температурном интервале (согласно данным на рис. 4).

Электронно-микроскопические данные о начале образования гелиевой пористости в никеле при 600 °C и в стали при 700 °C косвенным обра-

зом подтверждают тот факт, что в этом случае атомы гелия в указанных материалах обладают существенной диффузионной подвижностью. Наличие в этом же диапазоне температур (600—700 °C) вторых пиков скорости выделения гелия (см. рис. 1 и 3) предполагает вакансионный механизм диффузии атомов газа.

Если выделение газа при нагреве материала с постоянной скоростью контролируется объемной диффузией газовых атомов, то по температуре соответствующего максимума  $T_m$  можно определить энергию активации диффузии атомов газа в материале [4, 5, 9], воспользовавшись соотношением

$$\frac{Q}{T_m} \approx 69,5 + 4,6 \lg \frac{T_m}{p^{2\beta}} + 4,6 \lg \frac{K_0}{10^{15}},$$

где  $p$  — число атомных слоев от насыщенного газом слоя до поверхности образца;  $K_0$  — ча-

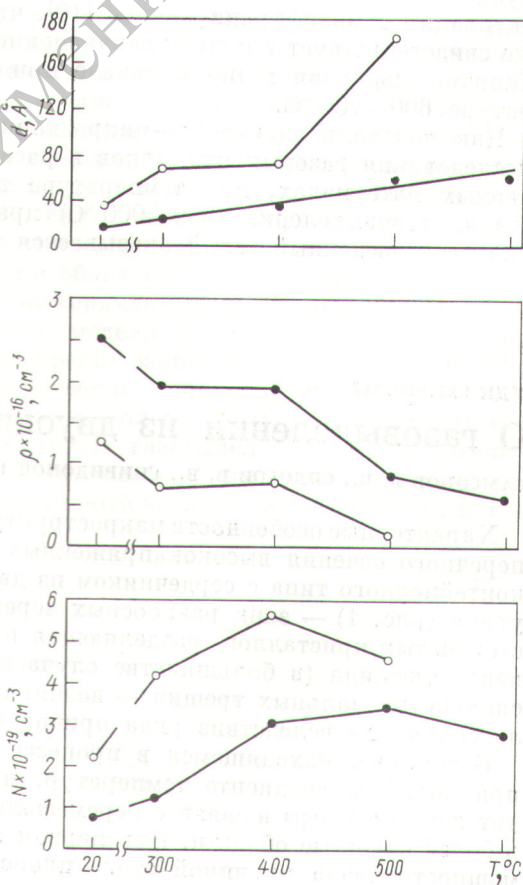


Рис. 4. Зависимость среднего диаметра  $\bar{d}$ , концентрации петель  $\rho$  и числа смещенных атомов  $N$ , заключенных в петлях дислокации, от температуры изохрональных отжигов продолжительностью по 0,5 ч:  
○ — никель; ● — сталь 0X16H15M3B

стота колебания диффундирующих атомов, значение которой для многих металлов можно принять равным  $10^{15} \text{ с}^{-1}$  [6]. Необходимо заметить, что таким способом можно получить лишь оценочные значения энергии активации, так как используемые значения  $p$  и  $K_0$  являются данными расчетного характера. В результате вычислений было получено, что энергия активации диффузии гелия в исследованных материалах, рассчитанная по температуре, соответствующей вторым пикам на кривых скорости выделения инертного газа, для никеля и стали 0X16N15M3B приблизительно одинакова: 45—50 ккал/(г·атом), так как температура этих пиков почти совпадает (разница в пределах разброса экспериментальных данных). Данные значения энергии активации диффузии гелия в никеле и стали совпадают с результатами работы [3]. Отметим, что энергия активации диффузии гелия в никеле соответствует энергии активации самодиффузии никеля [10], что также свидетельствует в пользу вакансионного механизма диффузии гелия в никеле при температуре 600—700 °С.

Как показали электронно-микроскопические исследования газовых пузырьков в рассматриваемых материалах, при температуре третьей стадии газовыделения (800—900 °С) практически весь введенный гелий оказывается заклю-

ченным в пузырьках. Поэтому при температуре 900 °С и выше выделение гелия из материала может происходить лишь за счет ненаправленной миграции газовых пузырьков к поверхности образца, так как перерастворение гелия, находящегося в порах, в отсутствие нейтронного облучения маловероятно ввиду крайне низкой растворимости этого газа в металлах и сплавах.

Поступила в Редакцию 14/XI 1974 г.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Glyde H., Mayne K. «Philos. Mag.» 1965, v. 12, 1965, p. 919.
2. Скоров Д. М. и др. «Атомная энергия», 1973, т. 35, вып. 4, с. 269.
3. Whitmell D., Nelson R. «Radiation Effects», 1972, v. 14, p. 249.
4. Kelly R., Matzke H. «J. Nucl. Mater.», 1966, v. 20, p. 171.
5. Ruedl E., Kelly R. Ibid., 1965, v. 16, p. 89.
6. Kelly R., Brown F. «Acta Met.», 1965, v. 13, p. 169.
7. Willertz K., Shewmon P. «Met. Trans.», 1970, v. 1, p. 2217.
8. Арапова Н. П. и др. «Изв. АН. СССР. Сер. физ.», 1974, т. 38, № 11, с. 23.
9. Farrell J. e.a. «Vacuum», 1966, v. 16, N 6, p. 295.
10. Rantanen R. e.a. «J. Vacuum Sci. Technol.», 1969, v. 7, N 1, p. 18.

УДК 621.039.343

## О газовой выделении из двуокиси урана

САМСОНОВ Б. В., СИДОРОВ В. В., СПИРИДОНОВ Ю. Г., СУЛАБЕРИДЗЕ В. Ш., ЦЫКАНОВ В. А

Характерные особенности макроструктуры поперечного сечения высоконапряженных твэлов контейнерного типа с сердечником из двуокиси урана (рис. 1) — зона равноосных зерен, зона столбчатых кристаллов, разделяющая их кольцевая трещина (в большинстве случаев) и несколько радиальных трещин — возникают после облучения вследствие ряда причин [1].

В топливе, находящемся в процессе работы при большом градиенте температур, происходит перенос массы в связи с перемещением пор в более нагретые области. При первом подъеме мощности твэла причиной этого процесса является исходная пористость топлива, при последующих — или пористость топлива в области границы между зоной столбчатых кристаллов и зоной равноосных зерен, или разделяю-

щая эти две зоны кольцевая трещина. Механизм перемещения пор заключается в испарении двуокиси урана с более нагретой стенки поры и конденсации ее на более холодной стенке. Время формирования структуры определяется теплофизическим режимом работы твэла и не превышает нескольких десятков минут. Растущие столбчатые кристаллы образуются в условиях температурного градиента, поэтому во время работы в них не должны возникать температурные напряжения. В кристаллах зоны равноосных зерен температурные напряжения создаются с появлением градиента температуры. При прекращении работы твэла в зоне равноосных зерен напряжения исчезают, а в зоне столбчатых кристаллов возникают. Под действием этих напряжений происходит отрыв зон