

UO₂ [12]. Это означает, что уплотнение материала под облучением играет важную роль в деформации топлива.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Soloman A. «J. Amer. Ceram. Soc.», 1973, v. 56, N 3, p. 164.
2. Hough D. «J. Nucl. Mater.», 1975, v. 52, p. 279.
3. Brucklacher D. In: Proc. Intern. Conf. CEBC. London, Metals Soc., 1974, p. 118.
4. Мальгин В. Б. и др. «Атомная энергия», 1977, т. 42, вып. 1, с. 8.
5. Li J. «Acta Metallurgica», 1963, v. 11, p. 1269.
6. Чиркин В. С. Теплофизические свойства материалов атомной техники. М., Атомиздат, 1968.
7. Leithaker J., Godfrey J. «J. Nucl. Mater.», 1967, v. 21, p. 175.
8. Christian Affortit. Ibid., 1970, v. 34, p. 105.
9. Mikailoff H., Cloude J., Lallement R. In: Ceram. Nuclear Fuels. N.Y., Amer. Ceram. Soc., 1968, p. 113.
10. Brucklacher D., Dienst W. «J. Nucl. Mater.», 1970, v. 36, p. 244.
11. Brucklacher D., Dienst W. Ibid., 1972, v. 42, p. 285.
12. Hough D. Ibid., 1977, v. 65, p. 24.
13. Sykes E., Sawbridge P. Irradiation Creep of Uranium Dioxide. Rep. RD/B/M-1489, 1969.
14. Dienst W. «J. Nucl. Mater.», 1976, v. 61, p. 185.
15. Brucklacher D., Dienst W. In: Proc. IAEA Symp. «Experimental Results on the Mechanical Interaction between Oxide Fuel and Cladding in Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors». Vienna, 1974, p. 147.
16. Brucklacher D., Dienst W. In: Proc. Conf. on Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements. Berkeley, 1973.
17. Routbort J. e. a. «J. Nucl. Mater.», 1975, v. 58, p. 78.
18. Zeisser P., Maraniello G., Merlini C. Ibid., 1977, v. 65, p. 48.
19. Лавейкин Л. И. и др. В кн.: Техника радиационного эксперимента. Вып. 5. М., Атомиздат, 1977, с. 24.
20. Burton B., Reynolds G. «Acta Metallurgica», 1973, v. 21, p. 1073.
21. Perrin J. «J. Nucl. Mater.», 1971, v. 39, p. 175.
22. Perrin J. Ibid., 1972, v. 42, p. 101.
23. Routbort J., Javed N., Voglewede J. Ibid., 1972, v. 44, p. 247.
24. Freshley N. e.a. Ibid., 1976, v. 62, p. 138.
25. Marlowe M. «Trans. Amer. Nucl. Soc.», 1974, v. 18, p. 206.

УДК 621.039.531

Влияние условий облучения и химического состава на развитие радиационных повреждений в облученных нейтронами сталях и сплавах

ЩЕРБАК В. И., БЫКОВ В. Н., ДМИТРИЕВ В. Д., ПОРОЛЛО С. И.

Развитие быстрых реакторов стимулировало проведение интенсивных исследований в области радиационного материаловедения, которые позволили выявить основные закономерности развития вакансионной пористости и радиационной ползучести. Вместе с тем весьма широкий круг вопросов продолжает оставаться неясным, что в значительной мере связано с высокой чувствительностью изучаемого явления ко многим факторам.

В настоящей работе проанализировано и обобщено влияние нейтронного облучения на свойства некоторых экспериментальных образцов, а также ряда сталей и сплавов, применяемых в узлах активной зоны БР-10 и БОР-60. Предварительные данные этих исследований были опубликованы ранее [1—7].

Вакансионные поры. Исследования влияния флюенса Kt на кинетику распухания сталей 0X18N9T, X18N9, 1X18N10T и 0X16N15M3B

показали, что в начальный период развития вакансионной пористости средний диаметр пор растет по закону $(Kt)^{1/2}$ независимо от состава

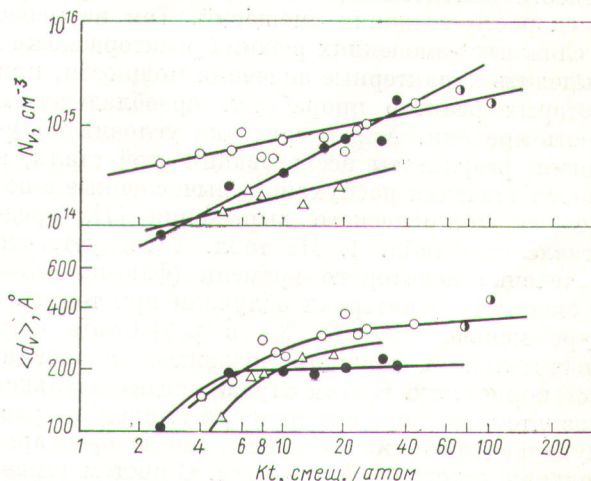


Рис. 1. Влияние флюенса на N_v , $\langle d_v \rangle$ пор в сталях 0X18N9T (○), X18N9 (●), 0X16N15M3B (●), 1X18N10T (Δ), облученных при температуре 460—470°C

Журнальный вариант доклада на конференции по реакторному материаловедению (Алушта, 1978 г.).

Условия облучения и распухание стали 0X16H15M3B в БОР-60

Kt, смещ./атом	T° C	Kt, смещ./атом	T° C	Kt, смещ./атом	T° C	Суммарный флюенс, смещ./атом	$\Delta V/V$ *, %
3,1	334	6,3	395	31,6	425	41	0,05; 0,4
3,1	340	6,3	415	31,6	450	41	0,2; 1,0
2,9	360	5,9	450	29,6	490	38,5	1,0; 2,0
2,6	365	5,25	470	26,4	515	34	1,4; 1,9

* Первое значение — экспериментальное, второе — расчетное.

материала (рис. 1). Далее скорость роста пор падает, и в области больших флюенсов средний диаметр пор изменяется незначительно. Концентрация пор N_V , в отличие от среднего диаметра, растет по степенному закону примерно до 100 смещ./атом (TRN — стандарт). Таким образом, для стали 0X18H9T относительный объем пор на начальном этапе увеличивается по закону, близкому к квадратичному, а после 30 смещ./атом $\Delta V/V$ возрастает пропорционально Kt .

Анализ экспериментальных данных показывает, что переменный режим работы реактора существенно влияет на кинетику зарождения и роста вакансионных пор [6]. Радиационное распухание стали 0X16H15M3B, используемой в качестве оболочек твэлов, в начальный период эксплуатации БОР-60 ниже, чем при облучении в БР-5. К особенностям облучения стали 0X16H15M3B в БОР-60 в этот период следует отнести значительные колебания температуры и скорости создания смещений. Тем не менее в сложных изменениях режима реактора можно выделить характерные значения мощности, при которых реактор проработал преобладающую часть времени. Характеристика условий облучения, результаты исследования этой стали, а также значения распухания, вычисленные с помощью эмпирического выражения [7], представлены в табл. 1. Из табл. 1 следует, что в течение некоторого времени (флюенс ~3—4 смещ./атом) материал облучали при температуре меньше 360—370 °C, в результате чего значительно подавляется развитие вакансионной пористости. В этом случае предварительное низкотемпературное облучение влияет на распухание таким же образом, как и предварительная холодная деформация. С ростом температуры облучения отжиг дефектов, образовавшихся в результате низкотемпературного облучения, происходит с большей скоростью и влия-

ние низкотемпературного облучения становится менее существенным.

Дислокационная структура. Изучение дислокационной структуры представляет исключительный интерес, поскольку плотность дислокаций определяет скорость зарождения и роста не только дислокационных петель и вакансионных пор, но также выделений других фаз. Эволюция дислокационной структуры сложным образом зависит от исходной плотности дислокаций N_d , условий облучения и химического состава сталей и сплавов. На начальном этапе облучения до флюенса ~10 смещ./атом увеличение суммарной плотности дислокаций, как следует из рис. 2, происходило за счет развития дислокационных петель. Анализ экспериментальных результатов и их сопоставление с данными о развитии пористости показывают, что кинетика зарождения и роста дислокационных петель в облученных нейтронами сталях менее чувствительна к изменениям химического состава материала и исходной плотности дислокаций. В области сравнительно низкой температуры (~360 °C) в сталях аустенитного класса наблюдаются дислокационные петли Франка

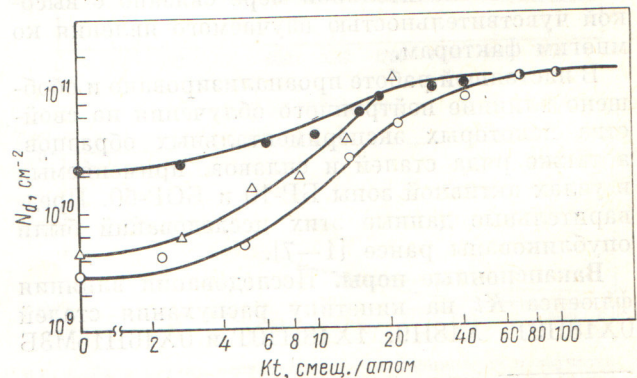
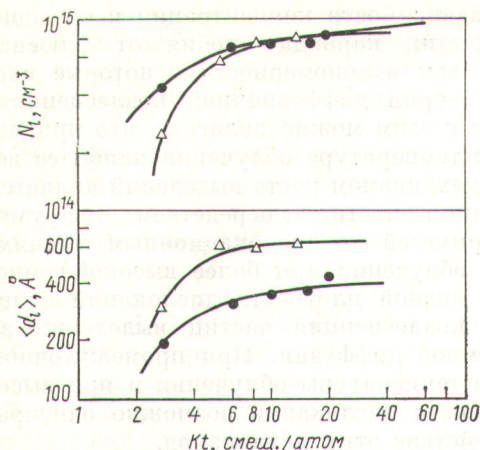


Рис. 2. Зависимость суммарной плотности дислокаций в сталях 0X18H9T (O), X18H9 (●), 0X16H15M3B (●) и 1X18H10T (Δ) от флюенса ($T_{обл} = 460 \div 470^\circ\text{C}$)



Р и с. 3. Зависимость N_d и $\langle d_l \rangle$ дислокационных петель в сталях ОХ16Н15МЗБ (●) и 1Х18Н10Т (Δ) от флюенса ($T_{\text{обл}} = 460 \pm 470^\circ\text{C}$)

межузельного типа. С ростом температуры облучения обнаруживаются также призматические петли. В образцах, облученных при температуре $>550^\circ\text{C}$, были найдены только призматические петли. Увеличение содержания никеля в сплавах системы Fe — Cr — Ni приводит к резкому увеличению числа призматических петель [3].

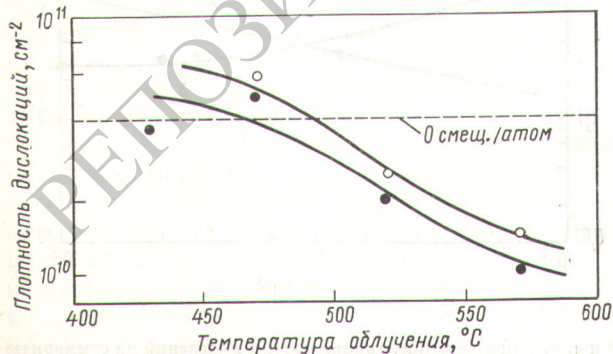
Как и в случае вакансионных пор, зависимость среднего диаметра дислокационных петель $\langle d_l \rangle$ от флюенса характеризуется двумя стадиями (рис. 3). На первой стадии в области небольших значений флюенса наблюдается ускоренный рост петель. При флюенсе, превышающем 5 смещ./атом, средний диаметр петель меняется слабо.

Из результатов исследования влияния температуры облучения на кинетику роста дислокационных петель в стали ОХ16Н15МЗБ сле-

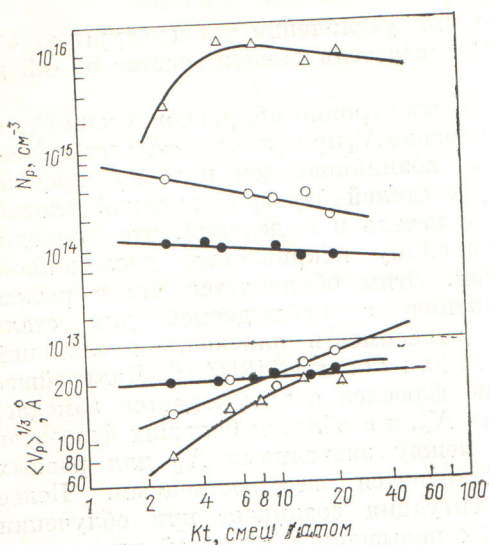
дует, что при увеличении температуры от 430 до 570°C показатель степени растет от 0,3 до 0,6 [6].

Согласно электронно-микроскопическим данным, увеличение N_d при флюенсе ~ 10 смещ./атом связано с возникновением к этому времени в структуре сталей барьеров высокой плотности в виде петель и выделений, что приводит к значительному искривлению дислокационных линий. Этим объясняется более резкая по сравнению с наблюдаемой для стали ОХ18Н9Т зависимость плотности дислокаций от флюенса для стали 1Х18Н10Т. Дальнейшее увеличение флюенса сопровождается замедлением роста N_d , и в области больших флюенсов различие между значениями N_d для разных сталей становится несущественным. Более сложная ситуация возникает при облучении материала с повышенной исходной плотностью дислокаций. На рис. 4 показана температурная зависимость плотности дислокаций в стали ОХ16Н15МЗБ, у которой до облучения N_d была равна $4 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$, что соответствует деформации 5—7%. Как видно из этого рисунка, облучение стали при температуре выше 500°C привело к процессу возврата, в результате чего наблюдалось падение плотности дислокаций. При переходе к большим флюенсам процесс возврата тормозится вследствие развития ансамбля выделений и дислокационных петель и наблюдается увеличение N_d во всем температурном интервале. Возрастание исходной плотности дислокаций до $3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ приводит к разрыву процесса рекристаллизации, которая становится заметной при температуре, превышающей 500°C [4]. Дальнейший рост N_d способствует ускорению рекристаллизации.

Выделения. Частицы выделений других фаз в облученных сталях обнаруживаются уже при флюенсе $\sim 5 \cdot 10^{20}$ нейтр./см². Исследование зависимости концентрации и среднего объема выделений карбида титана в стали 1Х18Н10Т и карбидов ниобия в стали ОХ16Н15МЗБ от флюенса показало, что начальный этап облучения характеризуется ростом концентрации и объемов образующихся выделений (рис. 5). Из этого рисунка следует, что процесс образования и роста карбида ниобия в стали ОХ16Н15МЗБ происходит несколько быстрее, чем карбида титана в стали 1Х18Н9Т. С ростом флюенса концентрация выделений растет до максимальной и затем падает по закону $N_p \sim (Kt)^{-1}$. При этом обнаружено, что процесс коалесценции выделений карбидов титана, ниобия и фазы Лавеса различным образом зависит



Р и с. 4. Зависимость плотности дислокаций в стали ОХ16Н15МЗБ от температуры при флюенсе 5 (●) и 20 (○) смещ./атом



Р и с. 5. Зависимость концентрации и среднего объема выделений карбида титана (Δ), карбида ниобия (\circ) и фазы Лавеса (\bullet) от флюенса ($T_{\text{обл}} = 470^\circ\text{C}$; $K = 2,2 \cdot 10^{-7}$ смеш./атом с)

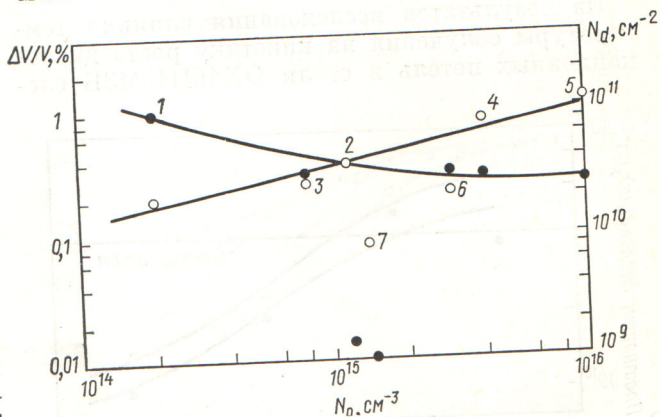
лучения зависимости концентрации и среднего объема частиц карбида ниобия от флюенса близки к тем закономерностям, которые следуют из теории диффузионной коалесценции.

В связи с этим можно полагать, что при пониженной температуре облучения наиболее вероятным механизмом роста выделений является коалесценция частиц посредством диффузии атомов примесей по дислокационным линиям. В случае облучения при более высокой температуре и низкой плотности дислокаций более вероятно коалесценция частиц выделений за счет объемной диффузии. При промежуточном интервале температуры облучения и при высокой плотности дислокаций возможно одновременное действие этих механизмов.

Влияние химического состава. Электронно-микроскопические наблюдения радиационных повреждений в сталях 0X18N9T, 1X18N10T, 00X16N16M3B и 0X16N15M3B показали, что влияние выделений на процесс зарождения и роста пор зависит от температуры облучения. При исследовании образцов, облученных при температуре выше 500°C , обнаруживается, что часть наиболее крупных пор ассоциирована с частицами выделений, причем с ростом температуры облучения увеличивается и относительная доля таких пор. Кроме того, некоторые наиболее крупные некогерентные выделения, подобно границам зерен, имеют свободные от пор зоны. Согласно результатам исследований [2], в области температуры выше 500°C частицы выделений влияют на развитие вакансионной пористости косвенным образом, увеличивая плотность дислокаций. Это увеличение может быть объяснено присутствием на пло-

от флюенса. При увеличении температуры облучения от 430 до 570°C показатель степени в уравнении для карбидов ниобия менялся от $-0,4$ до $-0,95$. Показатель степени в уравнении для среднего объема этих выделений в исследованном температурном интервале увеличивался от $0,6$ до $1,2$. Процесс коалесценции фазы Лавеса в этой температурной области слабо зависит от температуры и флюенса. Как известно, процесс коалесценции выделений в сталях может происходить двумя различными способами. В частности, выделения, образующиеся в результате облучения, могут исчезать вследствие диффузии отдельных примесных атомов от мелких выделений к крупным через матрицу. Согласно теории диффузионной коалесценции [8], кинетика роста частиц радиуса R_p определяется уравнениями $R_p \sim t^{1/3}$, $N_p \sim 1/t$. Если диффузия идет по дислокационным линиям, коалесценция протекает медленнее, чем при объемной диффузии, и средний размер и концентрация выделений со временем должны меняться по соотношениям [9] $R_p \sim t^{1/7}$ и $N_p \sim t^{-3/7}$.

Обращаясь к экспериментальным данным, видим, что показатели степени в уравнениях для среднего объема и концентрации выделений карбидов ниобия в облученной при 430°C стали 0X16N15M3B равны $3/7$ и $-3/7$ соответственно, как это следует из теории коалесценции при диффузии примесных атомов вдоль дислокаций. При более высокой температуре об-



Р и с. 6. Влияние концентрации частиц выделений на суммарную плотность дислокаций (\circ) и распухание (\bullet) некоторых сталей и сплавов при $T_{\text{обл}} = 460 \div 500^\circ\text{C}$ и $Kt = 14$ смеш./атом (обозначения сталей и сплавов даны в тексте)

скостях скольжения рассеянных мелкодисперсных выделений, которые в условиях пересыщения материала точечными дефектами приводят к значительным искривлениям дислокационных линий.

На рис. 6 приведены результаты изменений распухания, плотности дислокаций и частиц выделений в сталях и сплавах, облученных при температуре 460—500 °С до флюенса 14 смещ./атом [2, 3]. Согласно этим данным, в сталях 0X18H9T (1), 1X18H10T (5), 00X16H15M3B (4), 0X16H15M3B (6) и сплаве 0X16H80B (3) развитие пор и дислокационной структуры в значительной степени определяется образованием частиц выделений. С другой стороны, как уже отмечалось выше, кинетика зарождения и роста частиц выделений зависит от развития дислокационной структуры. Однако для ферритной стали 1X12M2C2 (7) и сплава 0X16H40B (2) подобной корреляции не обнаруживается. Эти результаты указывают, что изменения химического состава сталей и сплавов сложным образом влияют на процесс зарождения и роста скоплений точечных дефектов. Влияние легирующих элементов на зарождение и рост пор может быть объяснено:

увеличением скорости рекомбинации точечных дефектов [10];

аномальными изменениями парциальных коэффициентов диффузии атомов замещения [11];

изменениями коэффициентов диффузии вакансий и межузельных атомов, энергии дефектов упаковки, поверхностной энергии;

изменениями концентраций выделений, способных играть роль нейтральных стоков [12] или изменять плотность дислокаций [2].

Анализ результатов по распуханию сталей и сплавов показывает, что ни один из этих механизмов не может объяснить всю совокупность экспериментальных данных. Более глубокое понимание роли некоторых легирующих добавок может быть достигнуто, если предположить, что изменения химического состава существенно изменяют способность дислокаций захватывать точечные дефекты.

В табл. 2 приведены полученные [2, 3] значения параметра $(\eta - 1)$. Здесь η характеризует отношение поверхностей захвата дислокациями межузельных атомов и вакансий. Как следует из этой таблицы, параметр $(\eta - 1)$ для большинства сталей приблизительно равен 10^{-2} и лишь для ферритной стали и сплава 0X16B40B, отличающихся очень небольшим распуханием, снижается примерно до 10^{-3} . Отсюда малое распухание указанных материа-

Значения параметра $(\eta - 1)$ для некоторых сталей и сплавов

Таблица 2

Материал	$(\eta - 1) \cdot 10^{-2}$	Материал	$(\eta - 1) \cdot 10^{-2}$
1X12M2C2	0,3	0X16H15M3B	1,1
0X18H9T	0,8	0X16H40B	0,15
1X18H10T	1,0	0X16H80B	0,9
00X16H15M3B	0,75		

лов может быть объяснено меньшей разницей между поверхностями захвата дислокациями точечных дефектов.

Следует отметить, что влияние легирующих элементов на распухание материала наиболее отчетливо проявляется при небольших флюенсах и пониженной температуре облучения. Одно из возможных объяснений этого явления состоит в том, что облучение материалов до больших флюенсов или при высокой температуре приводит к глубоким изменениям состава матрицы за счет образования частиц выделений. При этом многие легирующие добавки, например Ti, Mo, Nb, C, N, выходят из твердого раствора, и таким образом их роль в процессе зарождения и роста пор становится менее существенной.

Выводы. Исследования кинетики зарождения и роста пор, дислокационной структуры и частиц фазовых выделений при флюенсах 1—100 смещ./атом позволяют сделать следующие выводы.

1. Зависимость концентрации пор в сталях от флюенса описывается степенным законом, причем показатель степени сильно зависит от состава стали и температуры облучения. Средний диаметр пор в начальный период облучения меняется по закону $(Kt)^{1/2}$, а в области больших флюенсов остается почти постоянным.

2. Во всех исследованных сталях при флюенсах более 5 смещ./атом суммарная плотность дислокаций возрастает по степенному закону, причем показатель степени изменяется от 0,4 до 1 в зависимости от состава стали и температуры облучения.

3. В начальный период облучения наблюдается стадия ускоренного зарождения частиц выделений, а при больших флюенсах их коалесценция. Установлена взаимосвязь кинетики роста и зарождения частиц выделений с плотностью дислокаций и температурой облучения.

4. Влияние химического состава стали, особенно отчетливо проявляющееся при пониженной температуре и малых флюенсах, по-види-

мому, объясняется воздействием легирующих элементов либо на способность дислокаций захватывать межузельные атомы, либо на механизм образования выделений новых фаз.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Щербак В. И. и др. В кн.: Вопросы атомной науки и техники. Сер. Топливные и конструкционные материалы. Вып. 1(6). М., изд. ВНИИИМ, 1977, с. 14.
2. Щербак В. И. и др. В кн.: Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. Вып. 1 (4). Харьков, изд. ХФТИ, 1977, с. 83.
3. Shcherbak V. I. e. a. In: Proc. of Intern. Conf. Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials.

4. Vorobiev A. N. e. a. «J. Nucl. Energy Soc.», 1977, v. 14, N 2, p. 149.
5. Поролло С. И. и др. «Атомная энергия», 1977, т. 43, вып. 3, с. 207.
6. Щербак В. И., Быков В. Н., Дмитриев В. Д. «Физика металлов и металловедение», 1977, т. 43, вып. 2, с. 419.
7. Shcherbak V. I. e. a. «J. Brit. Nucl. Energy Soc.», 1975, v. 14, N 2, p. 145.
8. Лифшиц И. М., Слезов В. В. «ЖЭТФ», 1958, т. 35, с. 47.
9. Ardell A. «Acta Metallurgica», 1972, v. 20, p. 61.
10. Schmidt F., Sprague J. «Scripta Met.», 1973, v. 7, N 5, p. 495.
11. Venker H., Ehrlich K. «J. Nucl. Mater.», 1976, v. 60, p. 347.
12. Bullough R., Perrin R. In: Proc. Europ. Conf. on Voids Formed by Irradiation of Reactor Materials. Reading, BNES, 1974, p. 78.

УДК 621.039.51

Измерение спектра нейтронов на критической сборке активационным методом

ЗОЛОТАРЕВ К. И., КОРОЛЕВА В. П., КОЛЕГАНОВ Ю. Ф., ЧЕРНОВ Л. А.

Измерение энергетических спектров нейтронов представляет большой интерес как для практики реакторостроения, так и для уточнения расчетных методик и выбора констант. Достаточно совершенные методы измерения спектров (по времени пролета, по протонам отдачи и др.) не смогли вытеснить один из наиболее ранних методов — активационный [1] вследствие его существенных преимуществ. Главные из них для спектрометрии — малые возмущения в точке измерения, возможность работать в полях смешанного излучения и охватывать практически весь энергетический диапазон формируемого в реакторе спектра. Серьезным недостатком активационного метода является отсутствие достаточной точности в определяемом спектре. Успех применения активационного метода в спектрометрии нейтронов зависит от точности определения скоростей реакций, числа активирующихся индикаторов с независимым ходом сечения реакции, точности используемых сечений реакций и от метода восстановления спектра. Поэтому для повышения точности восстановленного спектра желательнее совершенствовать как экспериментальные методы, так и методы восстановления спектра.

Цель настоящей работы — измерение спектра нейтронов активационным методом на методической критической сборке, разработка программы GIN для восстановления спектра по

активационным данным на базе методик, предложенных в работах [2, 3], применение индуктивного подхода к процессу восстановления спектра и сравнение полученных результатов со спектром, измеренным прямыми методами спектрометрии.

Эксперимент. Нейтронный спектр измеряли на методической критической сборке с гидридциркониевым замедлителем (отношение ядерных концентраций водорода к ^{235}U составляет ~ 25). В центре активной зоны определяли абсолютные значения скоростей реакций $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$; $^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$; $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$; $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$; $^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$; $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$; $^{115}\text{In}(n, n')^{115}\text{In}$; $^{235}\text{U}(n, f)$; $^{239}\text{Pu}(n, f)$ активационным методом и реакций $^{233}\text{U}(n, f)$; $^{238}\text{U}(n, f)$ — косвенным способом. Диаметр образцов для активации 9—25 мм. Облучение их проводили в кадмиевых фильтрах толщиной 0,5 мм. Наведенную активность измеряли полупроводниковым $\text{Ge}(\text{Li})$ -спектрометром (чувствительный объем 5 см³, энергетическое разрешение 2,7 кэВ для ^{57}Co) по фотопоглощению γ -квантов определенной, характерной энергии для каждой реакции. Импульсы с детектора после усиления анализировались 512-канальным аналого-цифровым преобразователем (АЦП) и запоминались в магнитном оперативном запоминающем устройстве (МОЗУ) реакторного измерительного центра (РИЦ). Накопленная в МОЗУ РИЦ информа-