

УДК 9.2:536.42

О.П. МАКСИМКИН, А. НАЛТАЕВ, Б.К. РАХАШЕВ, Д.Т. БЕРДАЛИЕВ

## ВЛИЯНИЕ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА МАРТЕНСИТНЫЕ $\gamma$   $\alpha$ ПРЕВРАЩЕНИЯ В НЕРЖАВЕЮЩЕЙ АУСТЕНИТНОЙ СТАЛИ 12Х18Н10Т

Представлены результаты по изучению прямого и обратного мартенситного превращения в аустенитной нержавеющей стали, облученной в реакторе ВВР-К до флюенсов нейтронов  $5\cdot10^{18}$  и  $2\cdot10^{20}$  н/см<sup>2</sup> при температуре 80°C.

**Введение.** Известно, что аустенитные нержавеющие стали, широко используемые в reactorостроении, в большинстве своем являются метастабильными. Деформация таких сталей при температурах ниже некоторой критической точки вызывает превращение аустенита в мартенсит, причем количество образующейся  $\alpha'$ -фазы увеличивается с ростом степени деформации [1]. Установлено также [2], что нагрев холоднодеформированных аустенитных сталей до температур 600-800°C приводит к уменьшению количества или полному отжигу индуцированного деформацией ферромагнитного  $\alpha$ -мартенсита. Эти явления бездиффузионного прямого и обратного  $\gamma \leftrightarrow \alpha$  превращений всесторонне исследованы для необлученных материалов, тогда как для облученных нержавеющих сталей число работ значительно меньше [3-5]. Между тем последствия мартенситных превращений необходимо принимать во внимание во многих практически важных случаях, например, при извлечении, разрезке и транспортировке отработавших тепловыделяющих сборок (ТВС) быстрых атомных реакторов. Это связано с тем, что  $\gamma \leftrightarrow \alpha$  переходы не только изменяют фазово-структурное состояние, но и в значительной степени влияют на механические и коррозионные свойства сталей.

Цель настоящей работы – экспериментально установить закономерности образования и развития мартенситной  $\alpha'$ -фазы в процессе деформирования облученной нейтронами стали 18-10 и изменения количества мартенситной  $\alpha'$ -фазы в процессе изотермических отжигов.

**Исследуемый материал и образцы.** Исследовали нержавеющую аустенитную сталь 12Х18Н10Т следующего химического состава (вес.%): С-0,1; Ni-10,66; Cr-17,0; Mn-1,67; Ti-0,5; Si-0,8; P-0,032; S-0,0032. Образцы для механичес-

ких испытаний гантелеобразной формы (рис.1) изготавливали на токарном станке из стального прутка диаметром 6мм. На головках образцов делали специальные закругления для центрирования в захватах разрывной машины. Выбранная форма образцов, совместно с захватами, обладающими конической внутренней поверхностью, обеспечивали соосность образца и простоту его установки в захваты, что особенно важно в экспериментах с материалами, обладающими вследствие нейтронного облучения высокой наивенной радиоактивностью. Размеры образцов подбирались, с одной стороны, с учетом минимизации радиационной опасности, а с другой – с целью уменьшения ошибки в определении механических характеристик, связанной с ростом размерного фактора при использовании микрообразцов.

После их изготовления образцы отжигали 60 минут при температуре 1150°C с последующим охлаждением в воду. Часть термообработанных образцов облучали в активной зоне атомного реактора ВВР-К в канале 11-8. Облучение проводили в воде при температуре ~80°C до флюенсов нейтронов  $5\cdot10^{18}$  и  $2\cdot10^{20}$  н/см<sup>2</sup> ( $E>0,1$  МэВ).

Для создания магнитной  $\beta$ -фазы стальные образцы были подвергнуты деформированию, которое проводили на универсальной разрывной машине «Instron-1195» при комнатной температуре со скоростью растяжения 0,5 мм/мин. Количество магнитной  $\beta$ -фазы в деформируемых образцах фиксировалось при комнатной температуре с помощью феррозонда «Feritscope MP30», который предназначен для измерения содержания феррита в сварных швах и оболочках из аустенитной и дуплексной стали, а также для определения процентного содержания мартенсита в аустенитных нержавеющих сталях. В

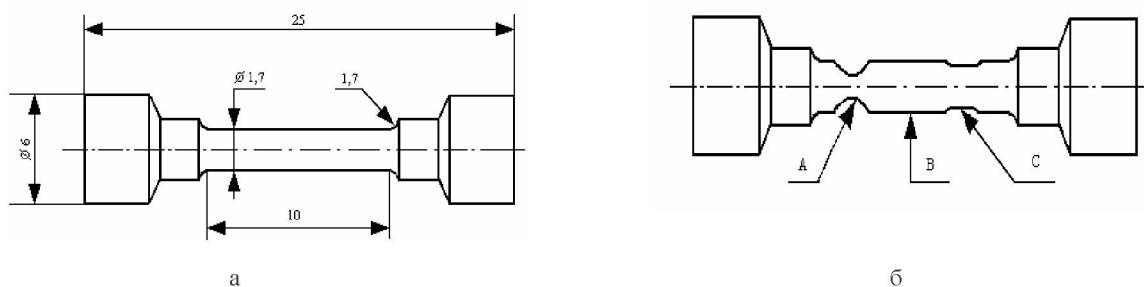


Рис. 1. а) Размеры и форма исследуемых цилиндрических образцов из стали 12Х18Н10Т до растяжения; б) Схема образца после растяжения. Указаны области (точки) А, В и С, в которых измерялся диаметр и ферромагнитная фаза

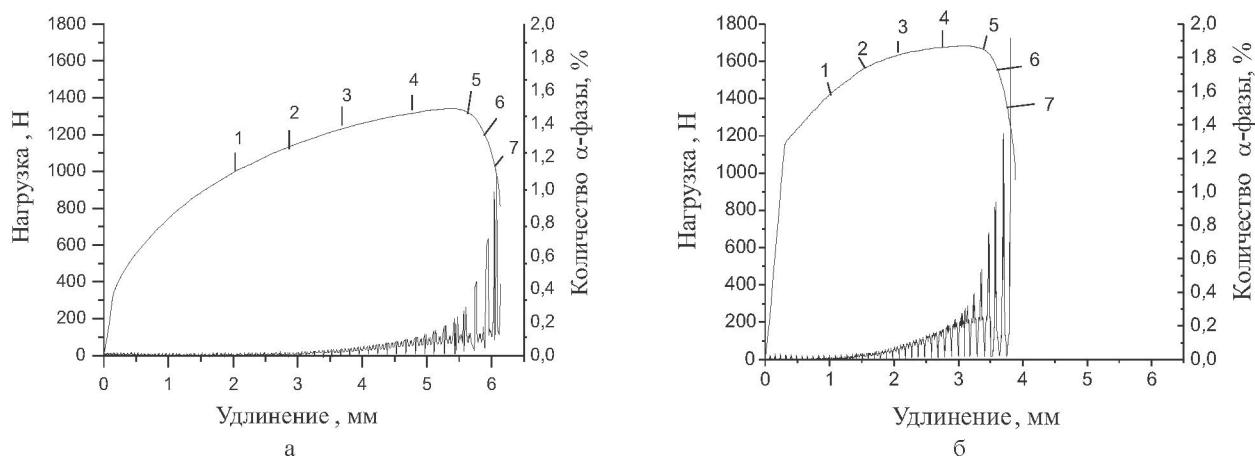


Рис. 2. Диаграммы растяжения и кривые накопления мартенситной  $\beta'$ -фазы для необлученного (а) и облученного (б) нейтронами ( $2 \cdot 10^{20} \text{ н}/\text{см}^2$ ) образцов стали 12Х18Н10Т ( $T_{\text{исп}} = 20^\circ\text{C}$ ).

приборе используется магнитно-индукционный метод измерения, при котором содержание феррита определяется по величине магнитной проницаемости. Чувствительность в определении  $\beta'$ -фазы составила 0,05%. В процессе растяжения феррозонд возвратно-поступательно перемещался вдоль деформируемого образца вырисовывая профиль распределения  $\alpha$ -фазы по его рабочей длине. Одновременно с помощью разработанного оптико-электронного экстензометра регистрировали изменение диаметра в каждом интересующем сечении образца.

Перед проведением отжигов у облученных деформированных образцов отшлифовывали головки и часть галтелей с целью уменьшения их радиоактивности и увеличения времени работы оператора по изучению распределения намагниченности вдоль длины образца. Для систематического измерения количества ферромагнитной  $\beta'$ -фазы, образовавшейся в результате растяжения, на образце выбирались точки (области), как показано на рисунке 1б. Диаметр рабочей части образцов до и после деформации измеряли при

помощи электронного микрометра «Magnescale LY-101» фирмы «SONY».

Предварительную термическую обработку (аустенитизация) образцов и постдеформационные отжиги проводили в электрической печи «СУОЛ-044 2М2». Во время эксперимента печь нагревали до заданной температуры, после чего в нее помещали вакуумированную колбу с образцом. Скорость нагрева образца до заданной температуры, контролируемой термопарой, составляла при  $400^\circ\text{C}$  –  $15,8^\circ\text{C}/\text{мин}$ ,  $600^\circ\text{C}$  –  $30,5^\circ\text{C}$ ,  $800^\circ\text{C}$  –  $65^\circ\text{C}/\text{мин}$ . В случае образования на поверхности окисной пленки по окончании отжига образцы полировали в электролите следующего состава: 20 г –  $\text{CrO}_3$ , 98 мл –  $\text{H}_3\text{PO}_4$ , 2 мл –  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

#### Экспериментальные результаты и их обсуждение

Влияние нейтронного облучения на механические свойства стали 12Х18Н10Т. В процессе растяжения были получены машинные диаграммы для необлученных и облученных нейтронами образцов стали 12Х18Н10Т, представленные на рисунке 2.

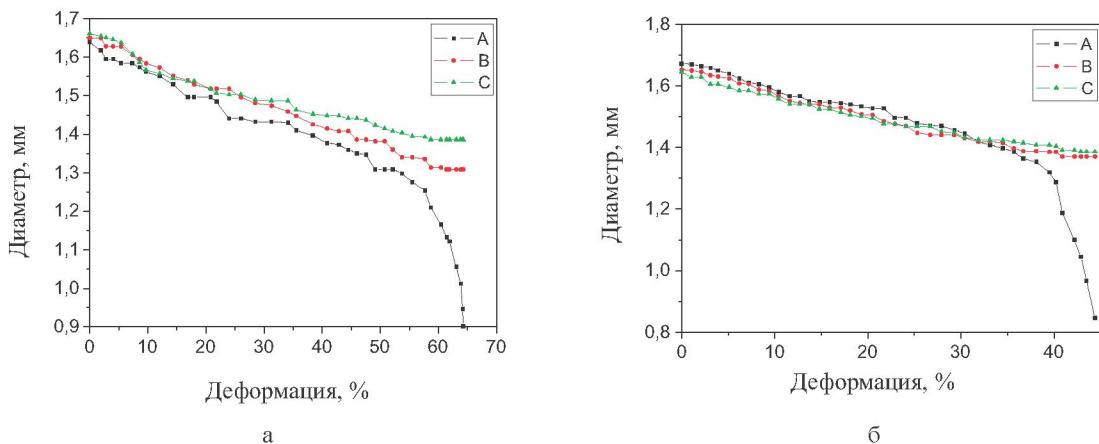


Рис. 3. Изменение диаметра образца стали 12Х18Н10Т в процессе пластической деформации в трех областях на образце (А – шейка, В и С – произвольные области). а–необлученный; б–облученный нейtronами флюенсом  $2 \cdot 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>

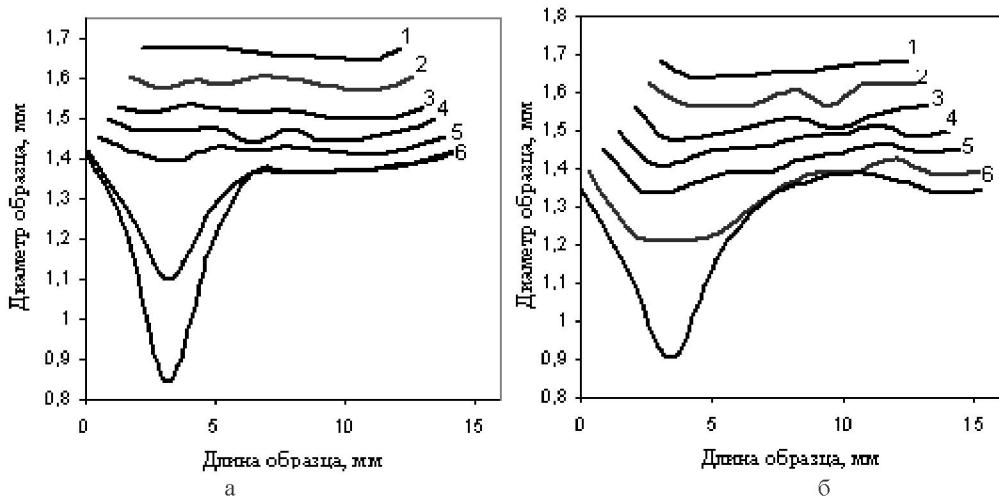


Рис. 4. Изменение диаметра образца стали 12Х18Н10Т в процессе пластической деформации  
(по данным оптического экстензометра) а – необлученный; б – облученный нейtronами флюенсом  $2 \cdot 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>.  
Цифры у кривых означают моменты растяжения и соответствуют точкам на кривых, приведенным на рисунке 2

Кроме инженерных кривых на этом же рисунке зафиксированы кривые накопления мартенситной  $\beta'$ -фазы в процессе растяжения, из которых можно видеть, как изменялось количество  $\beta'$ -фазы не только по длине образца, но и только в шейке.

На рисунке 3 приведены экспериментальные кривые изменения в процессе растяжения диаметров стальных образцов, которые в дальнейшем использовали для построения «истинных» диаграмм растяжения. За изменениями диаметра следили с помощью оптического экстензометра в трех различных областях (А, В и С) на образцах, выбранных согласно рис. 1б.

Анализируя данные, представленные на рисунке 3, можно заключить, что деформация про-

текает попеременно то в одной области, то в другой, то есть неравномерно по всей рабочей длине образца. Если, например, диаметр уменьшается в точке А, то в точках В и С он изменяется незначительно или не изменяется вовсе. Этот вывод также подтверждают данные экстензометрии, приведенные на рисунке 4, на котором показано, как изменяется диаметр по всей длине образца.

Если сравнить изменение диаметров в нескольких, в данном случае трех областях на облученном и необлученном нейtronами образцах стали 12Х18Н10Т (рис. 4), то можно заключить, что в облученном образце до определенного момента времени он изменяется равномернее, чем в необлученном, после чего происходит резкое

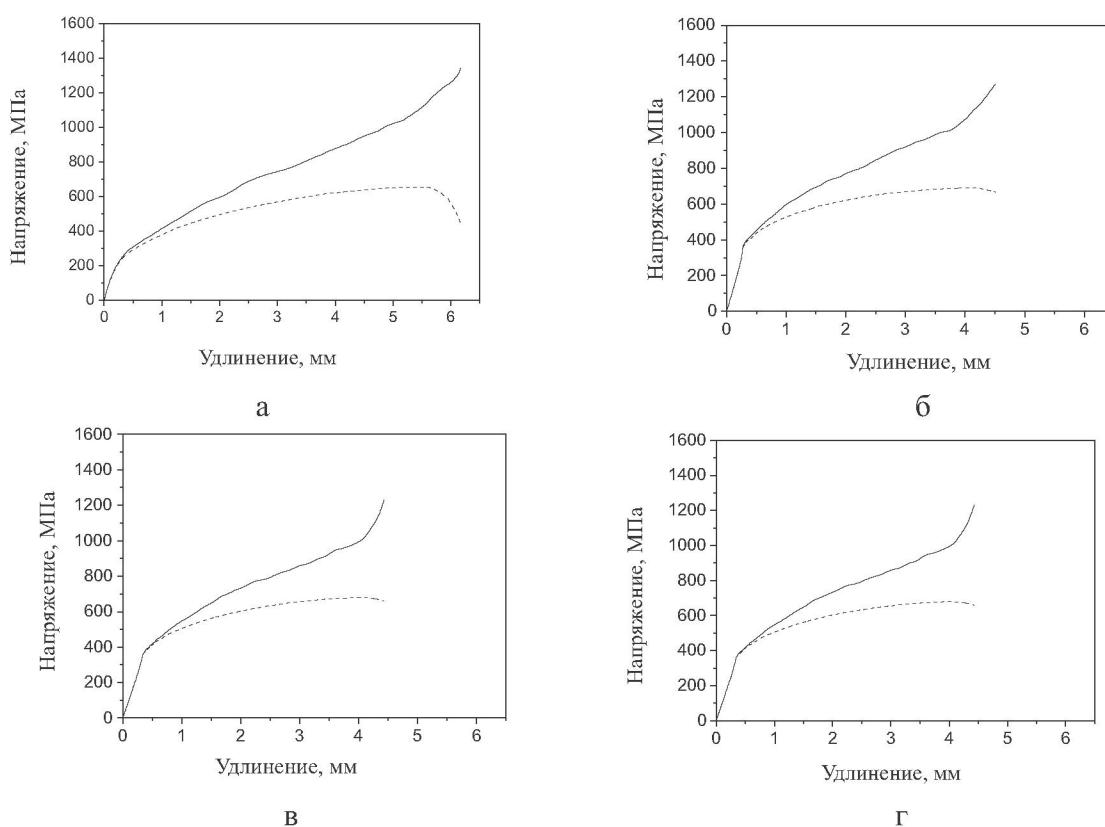


Рис. 5. «Истинные» и инженерные диаграммы растяжения образцов стали 12Х18Н10Т.  
 (---- — инженерные, — — истинные) а – необлученный образец стали 12Х18Н10Т, б – сталь 12Х18Н10Т, облученная нейtronами флюенсом  $2 \cdot 10^{18} \text{ н/см}^2$ ; в – сталь 12Х18Н10Т, облученная нейtronами флюенсом  $5 \cdot 10^{18} \text{ н/см}^2$ ; г – сталь 12Х18Н10Т, облученная нейtronами флюенсом  $2 \cdot 10^{20} \text{ н/см}^2$ .

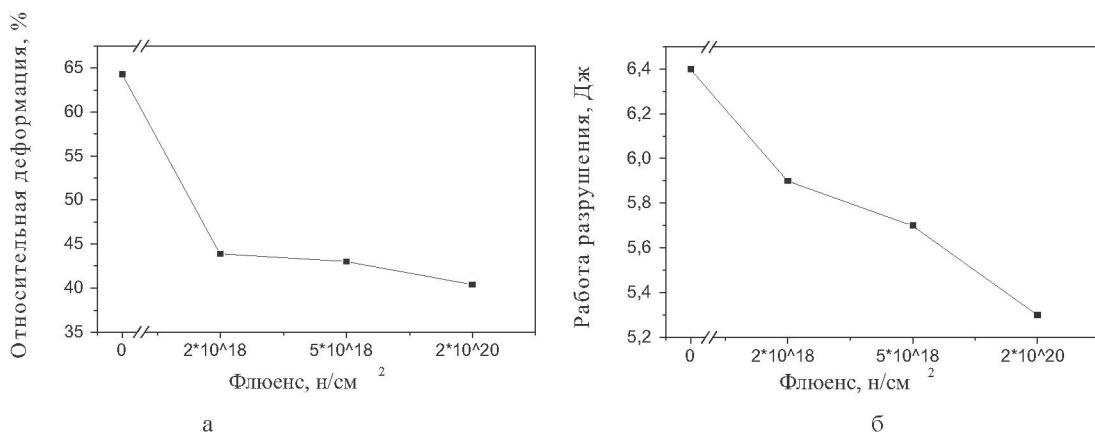


Рис. 6. Графики изменения механических характеристик стали 12Х18Н10Т в зависимости от флюенса нейтронного облучения. а – пластичность; б – работа, затраченная на разрушение образца

уменьшение диаметра в одном из мест, то есть образуется шейка.

«Истинные» кривые растяжения стали 12Х18Н10Т. На рисунке 5 представлены «истинные» диаграммы растяжения облученных и необлученных образцов, построенные в координатах «напряжение-удлинение», полученные с учетом

изменения геометрических размеров образца во время растяжения. Здесь же для сравнения приведены условные диаграммы растяжения.

На основании вышеприведенных результатов можно заключить, что после облучения нейтронами образцов стали 12Х18Н10Т требуется меньшая деформация  $\delta_{kp}$  для того, чтобы иницииро-

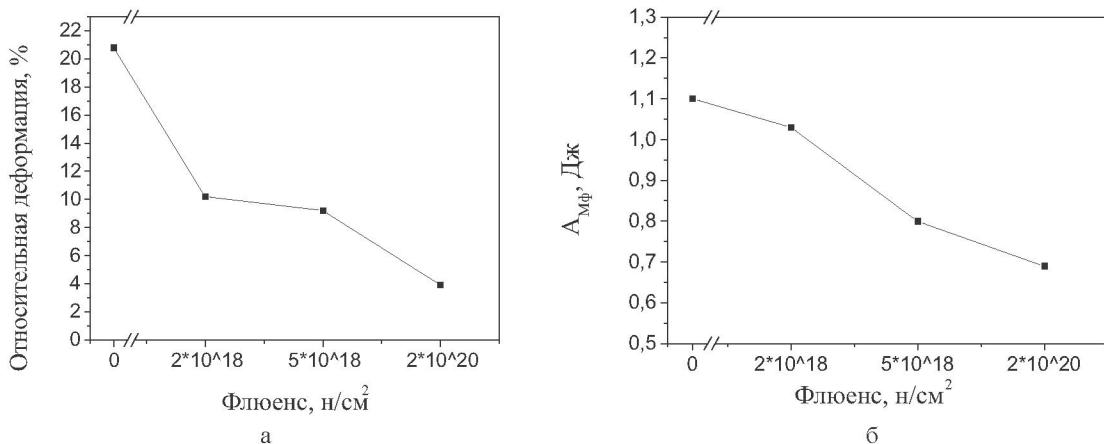


Рис. 7. Влияние флюенса нейтронов на критические значения деформации образования б-фазы (а) и работу, затраченную на растяжение до момента образования б-фазы (б)

Таблица 1. Значения коэффициентов **B** и **C** в уравнении  $\frac{M\phi}{1-M\phi} = B \cdot e^C$  для образцов стали 12Х18Н10Т в области шейки с разными флюенсами облучения нейtronами для наиболее протяженного участка деформации

№ образца	510	356	332	92
Флюенс, н/см²	0	2·10 <sup>18</sup>	5·10 <sup>18</sup>	2·10 <sup>20</sup>
B	-4,3	-3,0	-2,36	-3,7
C	3,49	2,76	2,65	2,56

вать в них процесс образования мартенситной б'-фазы при растяжении. При этом, чем больше флюенс облучения, тем меньше  $\delta_{kp}$ . Установлено также, что напряжение, при котором образуется б'-фаза, практически не зависит от степени облучения, и равняется  $\sim 600$  МПа. Полученные значения  $\delta$  и  $\sigma_{kp}$  использовали для определение механической работы, которую надо затратить, чтобы в стали образовалась  $\alpha$ -фаза. Установлено, что выше доза нейтронного облучения, тем меньшая работа затрачивается до начала образования мартенситной  $\alpha$ -фазы.

Кривые накопления мартенситной б'-фазы в шейке образца в процессе деформации, построенные в координатах  $M_\phi/(1-M_\phi) - \ln(F_0/F)$ , изображенные на рисунке 8, аппроксимировали уравнением  $M_\phi/A_\phi = Be^C$ . Оказалось, что при описании экспериментальных кривых с помощью данного уравнения выявляется три характерных участка с разными значениями B и C (рис 9). Полученные значения B и C приведены в таблице 1.

Из таблицы 1 видно, что коэффициент C для облученных нейтронами образцов меньше, чем для необлученных, и к тому же он несколько

уменьшается с увеличением флюенса. Коэффициент B в этом уравнении немного больше для облученных образцов, но корреляции коэффициента B с флюенсом облучения не обнаружено.

Выбор оптимального времени для отжига б'-фазы, (изотермические отжиги). С целью изучения закономерностей отжига мартенситной  $\alpha'$ -фазы индуцированной деформацией стали 12Х18Н10Т, прежде всего необходимо было определить, при каком времени выдержки целесообразно и достаточно проводить эксперименты при заданных температурах – 500, 600 и 700°C.

На основании результатов изотермических отжигов установлено, что при всех исследованных температурах содержание  $\alpha'$ -фазы в образце быстро изменяется в первые 20 мин, а затем скорость отжига уменьшается и после 40 минут количество  $\alpha'$ -фазы сохраняется практически неизменным. Отмечено, что выше температура отжига, тем больше скорость уменьшения  $\alpha'$ -фазы и сделано заключение, что необходимое время отжига ферромагнитной  $\alpha'$ -фазы в деформированных стальных образцах должно

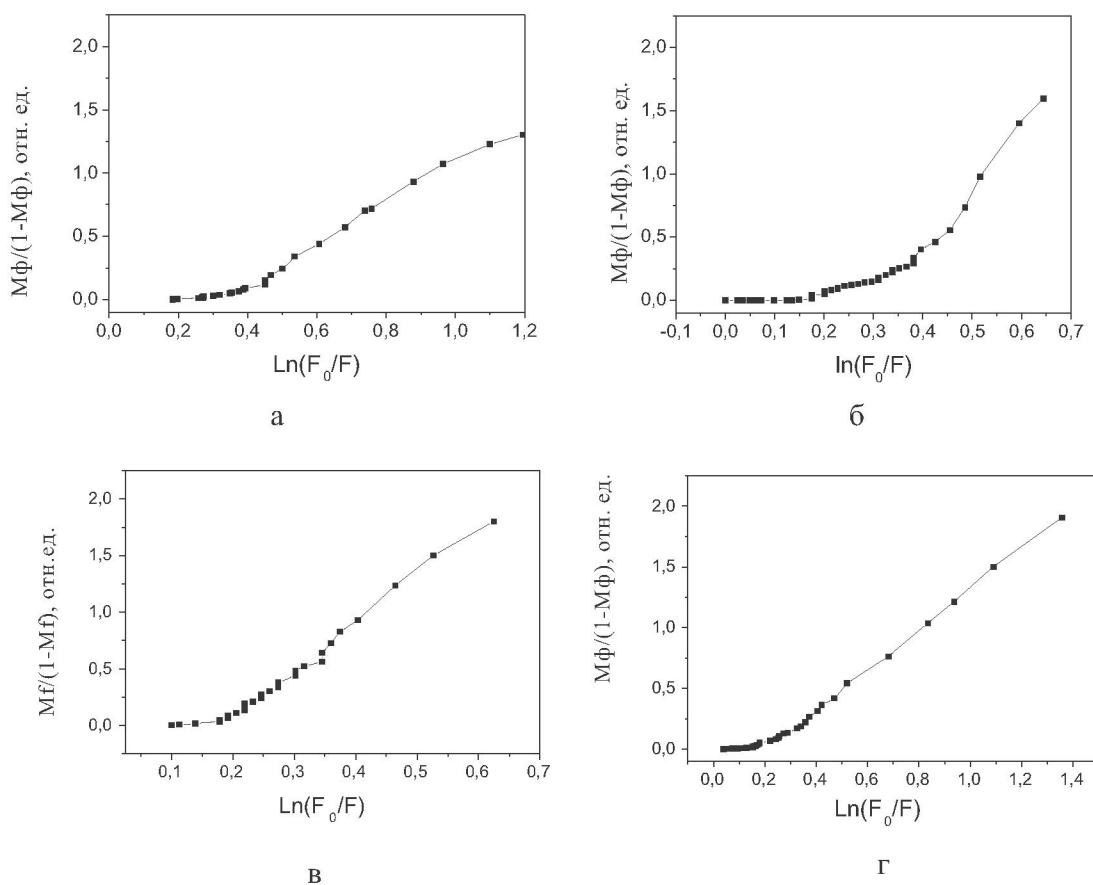


Рис. 8. Изменение относительного содержания мартенситной  $\beta'$ -фазы в зависимости от истинной деформации ( $e = \ln F_0/F$ , где  $F$  – площадь сечения рабочей части образца) в области шейки образца стали 12Х18Н10Т.  
 а – необлученный; б – облученный нейтронами ( $2 \cdot 10^{18} \text{ н}/\text{см}^2$ ); в – облученный нейтронами ( $5 \cdot 10^{18} \text{ н}/\text{см}^2$ );  
 г – облученный нейтронами ( $2 \cdot 10^{20} \text{ н}/\text{см}^2$ )

составлять 40 минут при всех выбранных температурах.

Закономерности уменьшения содержания  $\alpha'$ -фазы в зависимости от температуры отжига. На основании экспериментальных данных были построены графики зависимости  $\alpha'$ -фазы от температуры отжига в координатах « $M_f - T$ », где  $M_f$  – содержание магнитной  $\alpha'$ -фазы в образце (%),  $T$  – температура отжига ( $^{\circ}\text{C}$ ) для шеек всех исследованных образцов (см. рис. 10а).

Для того чтобы сопоставить и оценить разницу отжига магнитной фазы в необлученных и облученных образцах, были построены графики в относительных единицах, т.е. в координатах « $M_f/M_{f\max} - T$ », для шеек образцов (рис. 10б). Из рисунка 10б видно, что в облученных образцах в отличие от необлученного, уменьшение  $\alpha'$ -фазы начинается несколько позже по температуре, т.е. имеет место запаздывание процессов отжига.

Исследование закономерностей процессов отжига мартенситной  $\alpha'$ -фазы в различных областях вне шейки одного и того же образца показало, что фаза отжигается в них неодинаково.

Интенсивность отжига  $\alpha'$ -фазы. Из рисунков 10а и 10б видно, что при одних температурах  $\alpha'$ -фаза отжигается быстро, при других – вообще не отжигается, т.е. величина  $V = \Delta M_f / \Delta T$  (интенсивность отжига) изменяется при отжиге стали. Для выяснения закономерностей отжига феррофазы были определены значения интенсивности отжига (V) в различных интервалах температур. Построены графики зависимости интенсивности отжига фазы от средней температуры интервала в координатах « $V - T_{cp}$ » ( $V$  – интенсивность отжига магнитной  $\alpha'$ -фазы,  $T_{cp}$  – значение средней температуры) для области шейки и других точек на образце, указанных на рис. 1в.

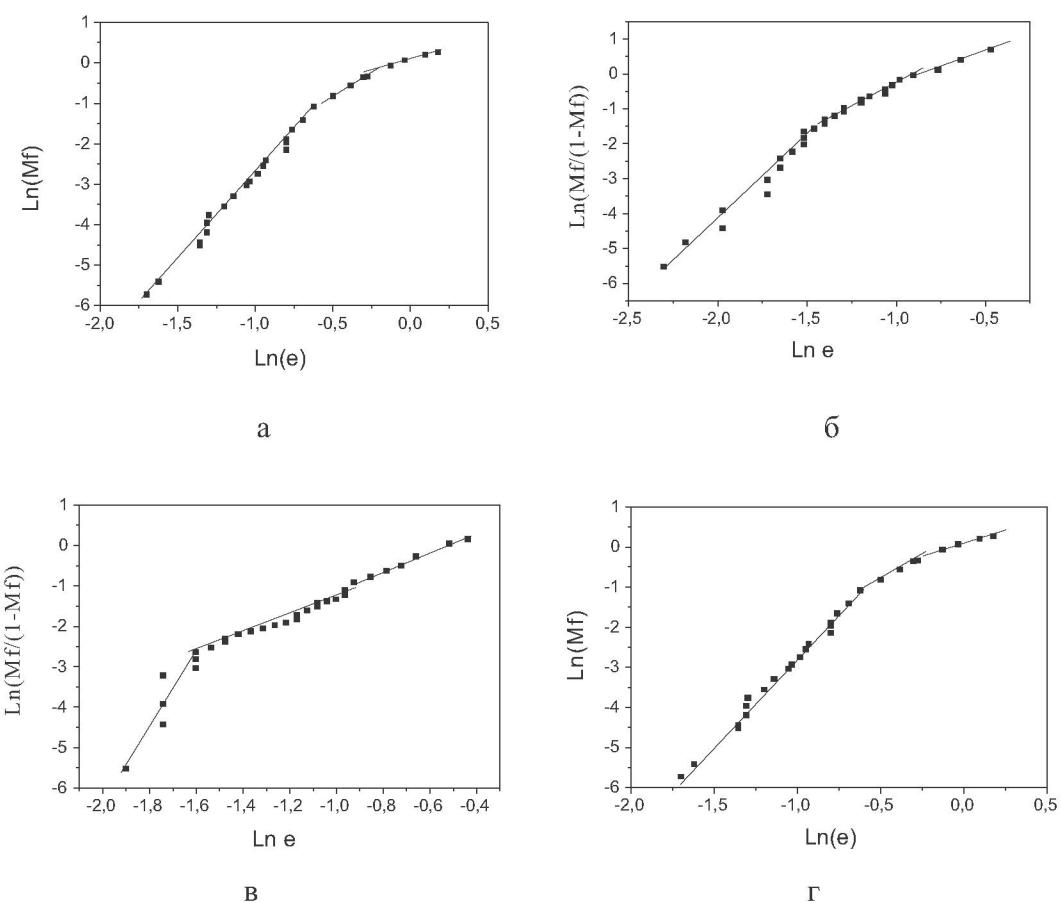


Рис. 9. Линеаризованные кривые образования и накопления  $\beta'$ -фазы в процессе растяжения стальных образцов стали 12Х18Н10Т: а – необлученный; б – облученный нейтронами ( $2 \cdot 10^{18}$  н/ $\text{см}^2$ ); в – облученный нейтронами ( $5 \cdot 10^{18}$  н/ $\text{см}^2$ ); г – облученный нейтронами ( $2 \cdot 10^{20}$  н/ $\text{см}^2$ )

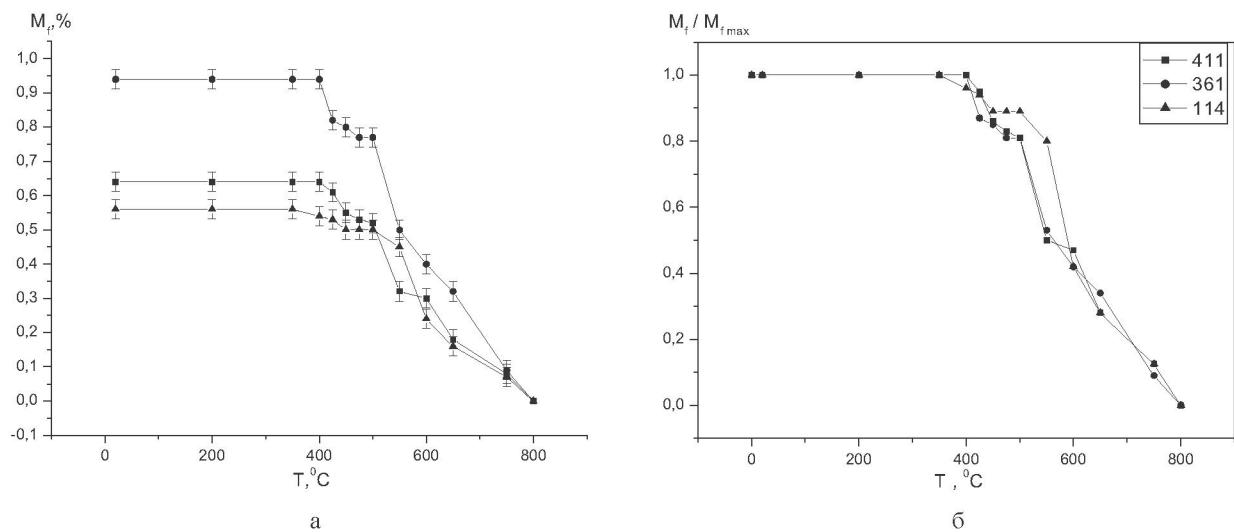


Рис. 10. а – изменение магнитной  $\alpha'$ -фазы (в шейке) в зависимости от температуры отжига образцов нержавеющей стали 12Х18Н10Т; б – Отжиг  $\alpha'$ -фазы в шейках образцов стали 12Х18Н10Т в относительных единицах (■ – необлученный, ● –  $\Phi = 5 \cdot 10^{18}$  н/ $\text{см}^2$ , ▲ –  $\Phi = 2 \cdot 10^{20}$  н/ $\text{см}^2$ )

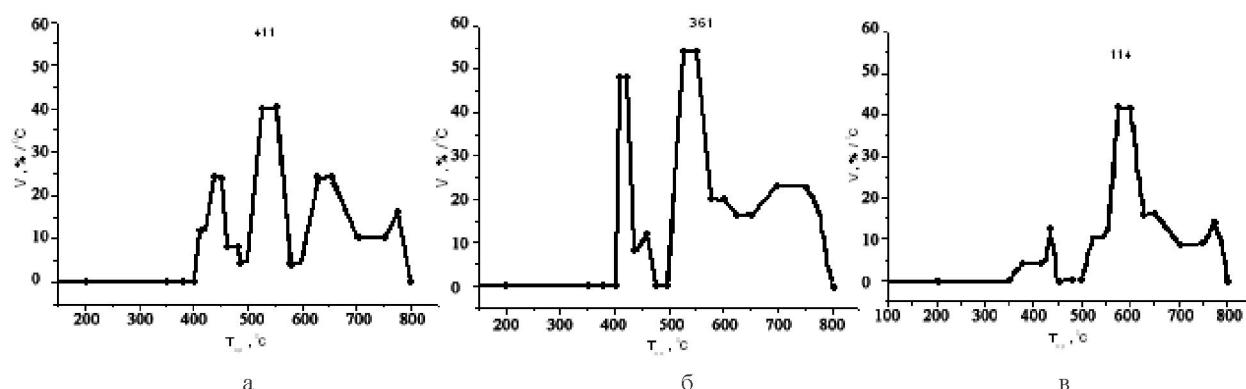


Рис. 11. Графики интенсивности отжига магнитной  $\alpha'$ -фазы в шейках образцов стали 12Х18Н10Т:  
а – необлученный, б –  $\Phi=5 \cdot 10^{18}$  н/см<sup>2</sup>, в –  $\Phi=2 \cdot 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>

На построенных графиках интенсивности отжига магнитной  $\alpha'$ -фазы в шейках образцов (см.рис. 11) можно наблюдать характерные максимумы (пики) в определенных температурных участках.

Проследив за первым пиком, мы видим, что для необлученного образца и облученного до флюенса  $\Phi=5 \cdot 10^{18}$  н/см<sup>2</sup>, он находится в интервале 400-475°C, с максимумом при средних температурах 435 и 410°C, соответственно. Интенсивность отжига при этом имеет достаточно высокие значения. У облученного нейтронами до флюенса  $2 \cdot 10^{20}$  н/см<sup>2</sup> образца первый пик интенсивности отжига находится в интервале температур 250-450°C, с максимумом при 435°C, причем значение интенсивности заметно меньше, чем у других образцов.

Второй характерный пик интенсивности отжига также имеет свои особенности. У всех образцов (облученных и необлученного) он имеет значения больше, чем первый пик, однако, видно значительную разницу размещения второго пика по оси температур. Для необлученной стали и облученной нейтронами до  $5 \cdot 10^{18}$  н/см<sup>2</sup> этот пик находится в интервале от 500 до 570°C с максимальным значением интенсивности при температуре 525°C, тогда как у образца, облученного до  $\Phi=2 \cdot 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>, – в интервале температур 500-800°C с максимумом при 600°C. Можно сделать вывод, что с повышением флюенса интенсивность отжига магнитной  $\alpha'$ -фазы смещается в область более высоких температур и процесс отжига происходит дольше.

Анализируя полученные графики (рис. 11), можно видеть, что имеется еще третий пик ин-

тенсивности отжига  $\alpha'$ -фазы. Этот пик явно выражен на графике для необлученного образца, тогда как для образца, облученного флюенсом  $\Phi=5 \cdot 10^{18}$  н/см<sup>2</sup>, он практически сливаются со вторым пиком, а для высокооблученной стали 12Х18Н10Т вообще отсутствует. Необходимо отметить, что независимо от того: была сталь облучена нейтронами или нет, полный отжиг магнитной  $\alpha'$ -фазы наблюдается при температуре 800°C.

Исследования отжига  $\alpha'$ -фазы в других, выделенных на образце, участках (1-5) показали, что как и в шейках, отжиг происходит поэтапно, имея так же характерные пики увеличения интенсивности. Чем ближе к шейке исследуемая область, тем выше значения интенсивности, причем с повышением флюенса интервал процесса отжига увеличивается и смещается в область более высоких температур так, что у необлученного образца полный отжиг  $\alpha'$ -фазы происходит гораздо раньше, чем у облученных стальных образцов.

Можно отметить также, что в шейках  $\alpha'$ -фаза отжигается интенсивнее, чем в других изученных областях образца, отличных от шейки.

### Заключение

Получены новые экспериментальные данные по влиянию нейтронного облучения на механические характеристики и параметры мартенситного  $\gamma \rightarrow \beta$  превращения, протекающего в нержавеющей стали 12Х18Н10Т при растяжении. Установлено, что в облученном материале процесс накопления индуцированной деформацией мартенситной  $\alpha$ -фазы происходит более интенсивно и равномернее по длине рабочей части образца, чем в необлученном.

Найдены кинетические параметры образования и накопления мартенситной фазы путем аппроксимации экспериментальных кривых уравнением  $F_m/F_{\text{ауст}} = Be^C$ . Коэффициент С данного уравнения для облученных нейтронами образцов больше, чем для необлученных, к тому же он возрастает с увеличением флюенса нейтронного облучения. Коэффициент В уравнения также несколько больше у облученных образцов, но корреляции коэффициента В у облученных нейтронами образцов с флюенсом облучения обнаружено не было. Коэффициенты В и С данного уравнения несколько больше для шейки образца, чем за ее пределами, причем для облученного материала они выше, чем для необлученного.

Выявлено, что после облучения нейтронами стали 12X18H10T требуется меньшая деформация для того, чтобы инициировать процесс образования мартенситной  $\alpha'$ -фазы. Причем, чем больше флюенс облучения, тем меньшая деформация образца для этого требуется. Установлено, что «истинное» напряжение, при котором образуется  $\beta'$ -фаза, практически не зависит от облучения. Кроме того, чем выше доза нейтронного облучения, тем меньшая работа затрачивается до начала образования мартенситной фазы.

Проведены исследования изменения магнитных свойств при изотермических отжигах (20–800°C) деформированной нержавеющей стали 12X18H10T в необлученном и облученном нейтронами ( $5 \cdot 10^{18}$  и  $2 \cdot 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>,  $E > 0,1$  МэВ) состояниях. Экспериментально найдено оптимальное время (40 мин), которое использовалось в изотермических отжигах деформированных стальных образцов в интервале 20–800°C.

Получены кривые распределения ферромагнитной  $\beta'$ -фазы по длине деформированных образцов на различных этапах отжига. Установлено, что  $\beta'$ -фаза отжигается интенсивнее в месте ее большего сосредоточения (в шейке), чем в менее деформированных участках образцов.

При отжиге  $\beta'$ -фазы можно выделить несколько стадий, характеризующихся различной скоро-

стью уменьшения намагниченности стали. Так, при 20–400°C изменений не наблюдается как в необлученных, так и в облученных образцах. В интервале температур отжига 400–800°C количество  $\beta'$ -фазы уменьшается с различной интенсивностью. Процесс обратного мартенситного  $\beta' \rightarrow \gamma$ -превращения как в необлученной, так и в облученной нейтронами стали 12X18H10T, полностью завершается при температуре 800°C.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Кайбышев О. А. Пластичность и сверхпластичность металлов. М.: Металлургия, 1975. 280 с.
2. Ибрагимов Ш. Ш., Максимкин О. П., Садвакасов Д. Х. Мартенситное  $\gamma \rightarrow \beta'$  превращение и механические свойства стали 12X18H10T, облученной нейтронами // ФММ. №5, 1992. С. 43–48.
3. Максимкин О.П., Цай К.В., Садвакасов Д.Х. Особенности кинетики образования  $\alpha'$ -мартенсита при деформации нержавеющей стали 12X18H10T, облученной нейтронами. //Вестник НЯЦ, 2007, вып.1, стр. 4-13.
4. Максимкин О.П., Налтаев А., Бердалиев Д.Т., Рахашев Б.К. Мартенситные  $\gamma \leftrightarrow \alpha'$  превращения в стали 12X18H10T, облученной в реакторе ВВР-К. //Вестник НЯЦ РК, 2007, № 3, стр. 53-57.
5. Максимкин О.П., Садвакасов Д.Х. Влияние температуры деформации и отжига на мартенситное  $\gamma \rightarrow \beta'$  превращение и механические свойства 12X18H10T облученной нейтронами //ФММ, 1991, вып.11, с. 147-150.

## Summary

The processes of annealing of martensitic  $\alpha'$ -phase, which induced by deformation of 12Cr18Ni10T stainless steel irradiated in WWR-K reactor up to  $5 \cdot 10^{18}$  and  $2 \cdot 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> at temperature of 80°C were investigated.

## Резюме

ВВР-К реакторында 80°C температурада  $5 \cdot 10^{18}$  және  $2 \cdot 10^{20}$  н/см<sup>2</sup> флюенске дейін нейтрондармен сөүлеленген 12X18H10T төт баспайтын болаттагы деформация барысында индукцияланған мартенситтік  $\alpha'$ -фазаны күйдіру үрдістері зерттелген.

*Институт ядерной физики НЯЦ РК,  
г.Алматы,  
ЮКГУ им. М.Аuezова, г. Шымкент,  
Международный Казахско-Турецкий  
университет, г.Шымкент*      Поступила 03.03.2009 г.