

Радіаційне матеріалознавство

Лекція 1. Вступ до курсу

План лекції:

1. Загальна характеристика предмета курсу.
2. Мета і завдання курсу. Опис дисципліни.
3. Загальні питання радіаційного матеріалознавства.
4. Загальні визначення та основні поняття радіаційного матеріалознавства.

Радіаційне матеріалознавство – наука, що вивчає вплив опромінення високоенергетичними частками різної природи та енергії на властивості матеріалів, головним чином, на службові характеристики матеріалів ядерних пристроїв.

Радіаційне матеріалознавство це сукупність методів для:

- розробки та створення матеріалів (конструкційних, функціональних, паливних та ін.) стійких до дії випромінювань;
- надання матеріалам необхідних властивостей для експлуатації в унікальних умовах опромінення:

- вивчення механізмів радіаційного пошкодження та відбору матеріалів з високою радіаційною стійкістю для діючих реакторів та реакторів наступних поколінь.

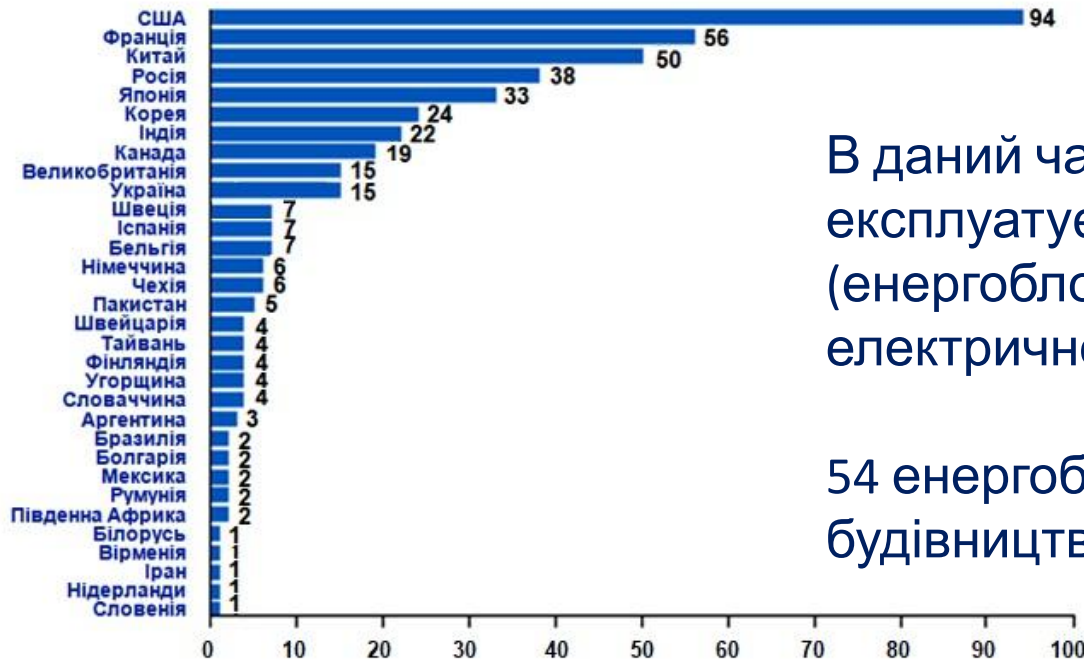


Основними цілями радіаційного матеріалознавства є встановлення (дослідження) причин зміни фізико-механічних властивостей матеріалів та їх розмірної стабільності під дією випромінювань електронів, нейтронів, протонів, α -частинок, важких іонів та γ -квантів; визначення терміну служби елементів конструкцій ядерних енергетичних установок у різних умовах опромінення (густина потоку частинок, їх енергія (енергетичний спектр), температура, час (доза опромінення)), відбір та розробка перспективних матеріалів, які мають високий опір впливу випромінювань.

Основні методи радіаційного матеріалознавства – реакторні випробування, експериментальна імітація нейтронного опромінення на прискорювачах заряджених частинок, мікроскопічні дослідження структури опромінених матеріалів та випробування їх механічних властивостей, розмірні зміни, методи математичного моделювання.



Ядерна енергетика сьогодні в світі



В даний час (2022 р) в 32 країнах світу експлуатується 440 ядерних реакторів (енергоблоків) загальною електричною потужністю 394 ГВт.

54 енергоблоки знаходяться на стадії будівництва.

Кількість енергоблоків АЕС в світі

Із загальної кількості реакторів, які знаходяться в експлуатації:

82,6% становлять реактори з легководним сповільнювачем і теплоносієм;

10,8 % – реактори з важководним сповільнювачем і теплоносієм;

3,2 % – газоохолоджувані реактори;

2,7% – легководні реактори із графітовим сповільнювачем;

0,7% – реактори на швидких нейтронах.

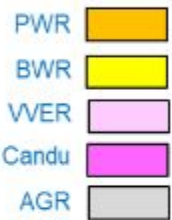
СЛОВО І ДІЛО

*За даними Statistical Review of World Energy 2022

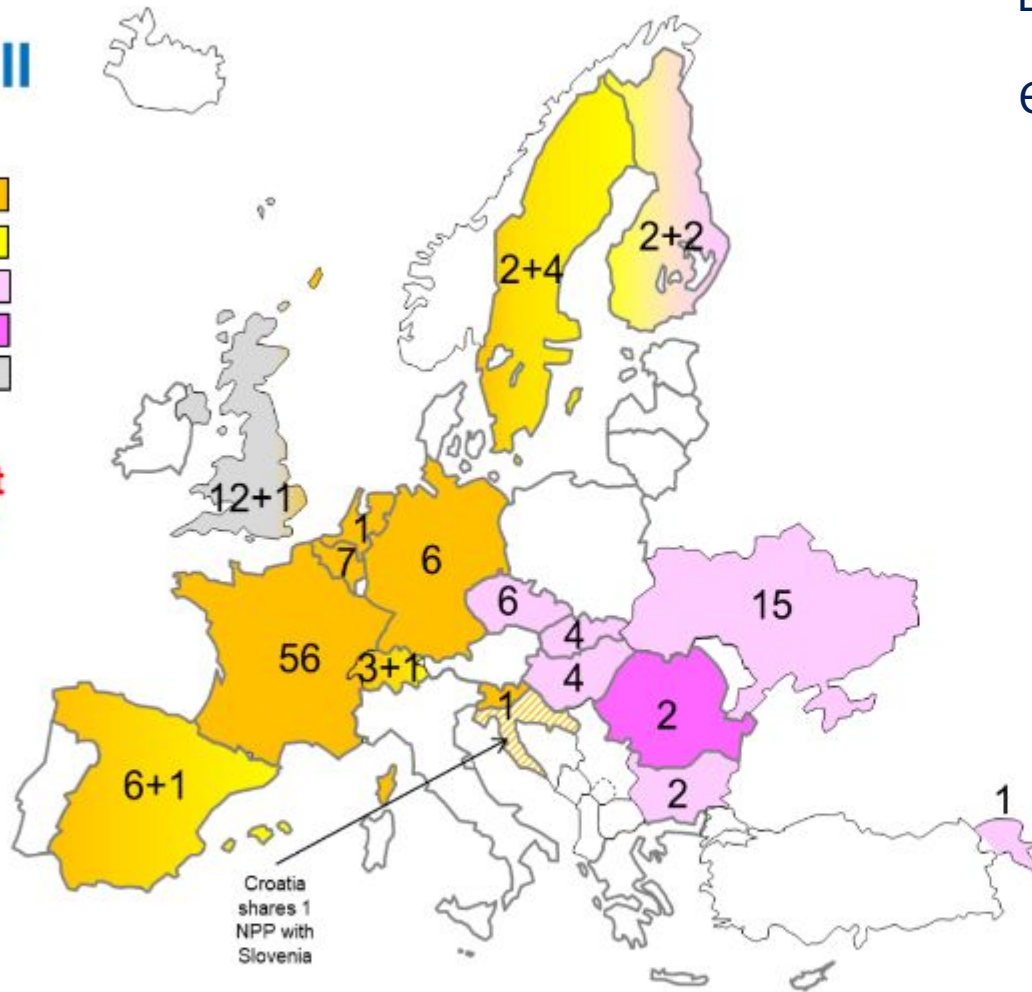


Ядерна енергетика в Європі

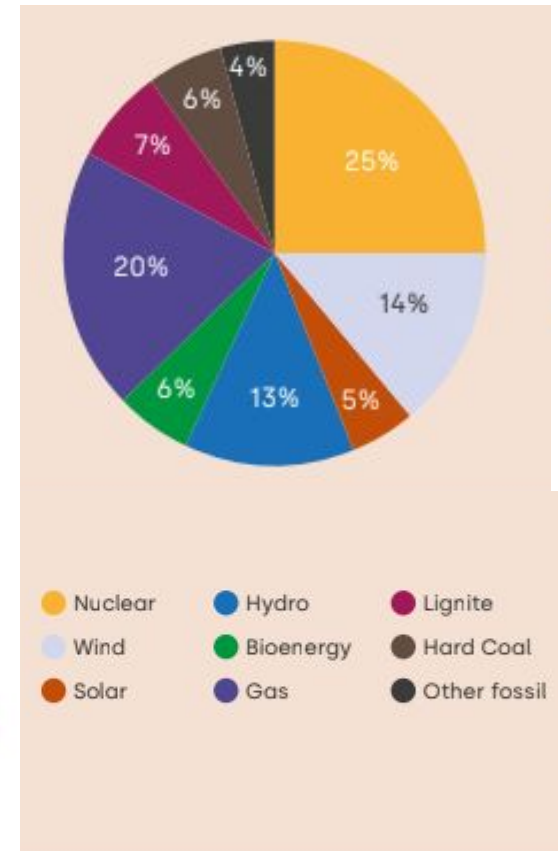
GenII/III
(2021)



5 different
systems!



Виробництво електроенергії за
видами палива у
Європейському союзі у 2020 р.



Ядерна енергетика України

В Україні діють **15** атомних енергоблоків
(13 реакторів ВВЕР-1000 і 2 ВВЕР-440).

Виробництво електроенергії у 2021 році в Україні становило **156,576 мільярда кВт·год**, що на 5,2% більше, ніж у 2020 році.

У 2021 р. частка виробництва електроенергії вітчизняними атомними електростанціями становила **55,1%** від загального виробництва електроенергії в країні.

КАРТА АЕС УКРАЇНИ



Ядерна енергетика сьогодні

- фактор сталого розвитку, який задовольняє потреби теперішнього часу, не ставлячи під загрозу здатність майбутніх поколінь задовольняти свої власні потреби;
- стабільна і незалежна від погодних умов електроенергія;
- основний фактор зменшення у атмосфері CO_2 .

На даний момент альтернативи ядерній енергетиці **не існує**, питання полягає в створенні енергобалансу, що включає як ядерні, так і інші джерела енергії.



Конструкційні матеріали визначають безпечну та економічну роботу атомних станцій.

Зараз конструкційні матеріали є критичною технологією, яка дуже обмежує комерційну перевагу і безпеку ядерної енергетики.

Конструкційні матеріали повинні залишатися стабільними на протязі всієї експлуатації (безпечні вихідні характеристики і постійні розміри).

Опромінення ніколи не поліпшує фізичні характеристики матеріалів, а тільки зумовлює їх деградацію.

Дослідження для розуміння та моніторингу поведінки матеріалів під час експлуатації та покращення характеристик матеріалів відіграють вирішальну роль у постійному підвищенні безпеки, ефективності та економічності ядерної енергетики

Що відбувається у матеріалі під впливом радіації?

- швидкі частинки «руйнують» ґратки, викликаючи перестрибування атомів матеріалу ними. Це призводить до зменшення пластичності та зростання крихкості;

- нейтрони можуть поглинатися різними атомами, викликаючи їх трансмутацію - перетворення на важчий елемент (наприклад $^{56}\text{Fe} + n \rightarrow ^{57}\text{Mn}$). Найчастіше ізотоп, що утворився, радіоактивний, і він розпадається через якийсь час. Так відбувається активація матеріалу – насичення його радіоактивними ізотопами;

- ці радіоактивні ізотопи можуть розпадатися з утворенням альфа-частинки. Альфа-частинки не залишають матерію, а рекомбінуються в гелій. Гелій накопичується всередині матеріалу, викликає його розпухання та розтріскування. Аналогічні процеси (у меншому масштабі) відбуваються із накопиченням водню, що утворюється при розпаді нейтронів;

- для дуже швидких нейтронів, що налітають, можливий прямий розвал атома конструкційного матеріалу, з утворенням безлічі уламків і радіоактивного залишку;

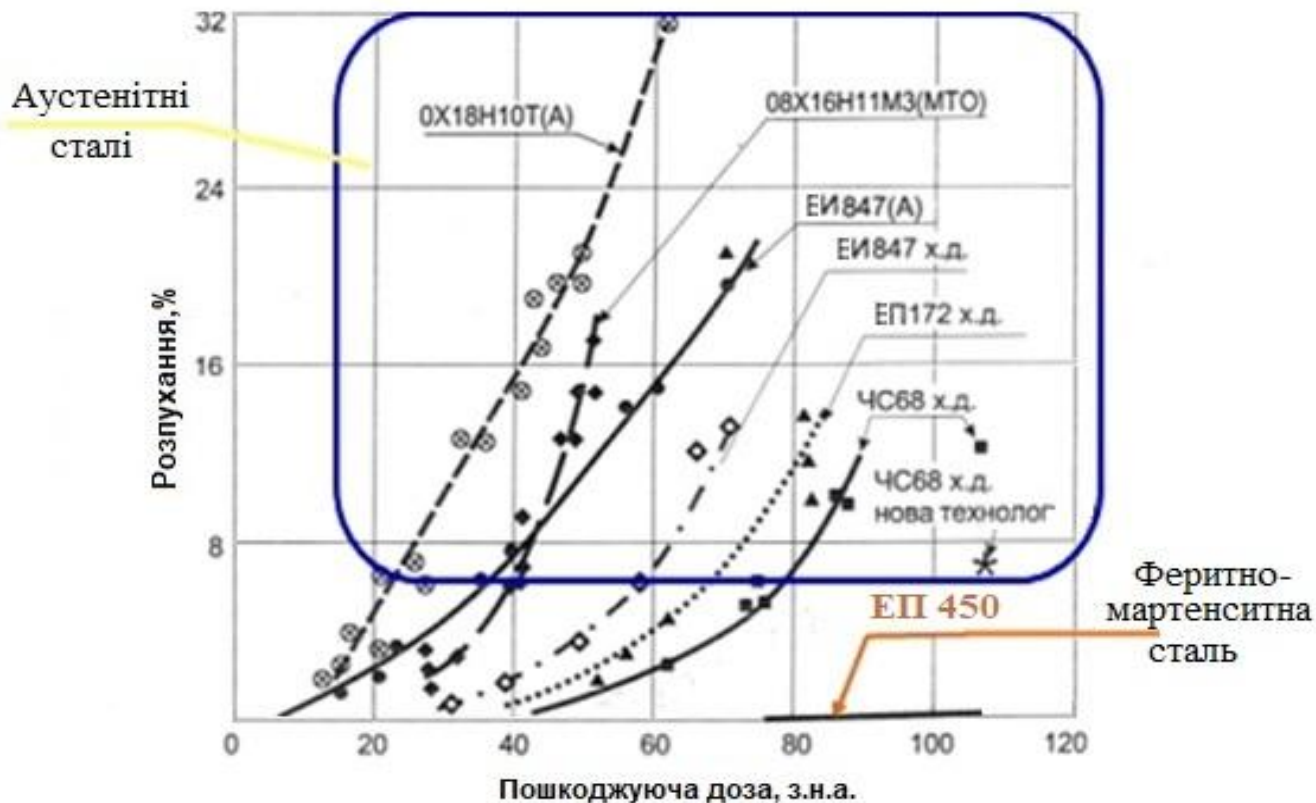
- активація матеріалу призводить до зміни його хімічного складу та різноманітних корозійних процесів.

На рисунку наведено вплив дії нейтронів на зразки з нержавіючої сталі, що призвело до їх розпухання.



Розпухання зразка з нержавіючої сталі під впливом нейтронів

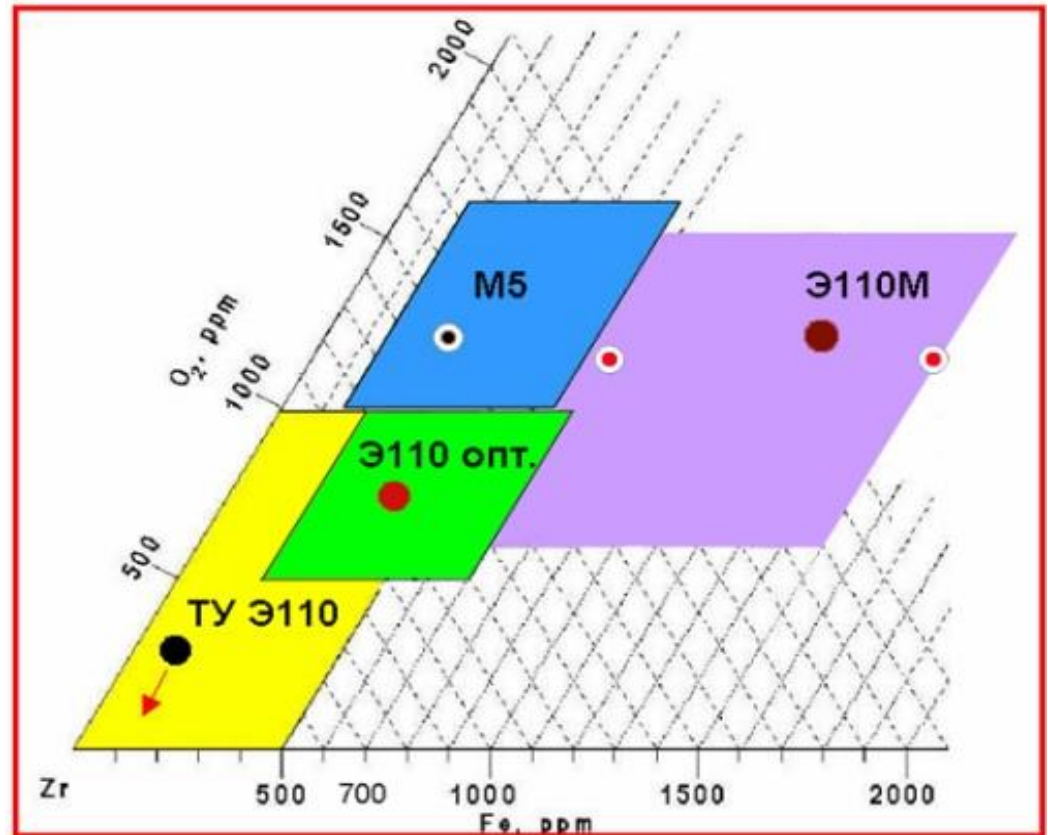
У радіаційному матеріалознавстві як одиницю впливу радіаційного опромінення на властивості матеріалів застосовують величину **з.н.а.** (**зна**) - зміщення на атом (або **dpa** – displacements per atom в англomовній літературі), яка визначає середню кількість разів, коли атом зміщується зі свого вузла кристалічної ґратки, тобто скільки в середньому на кожен атом доводиться актів взаємодії з випромінюваннями. **Характерні величини для ядерних реакторів – від 5 до 60 з.н.а.**



Дія реакторних умов на різні марки сталей

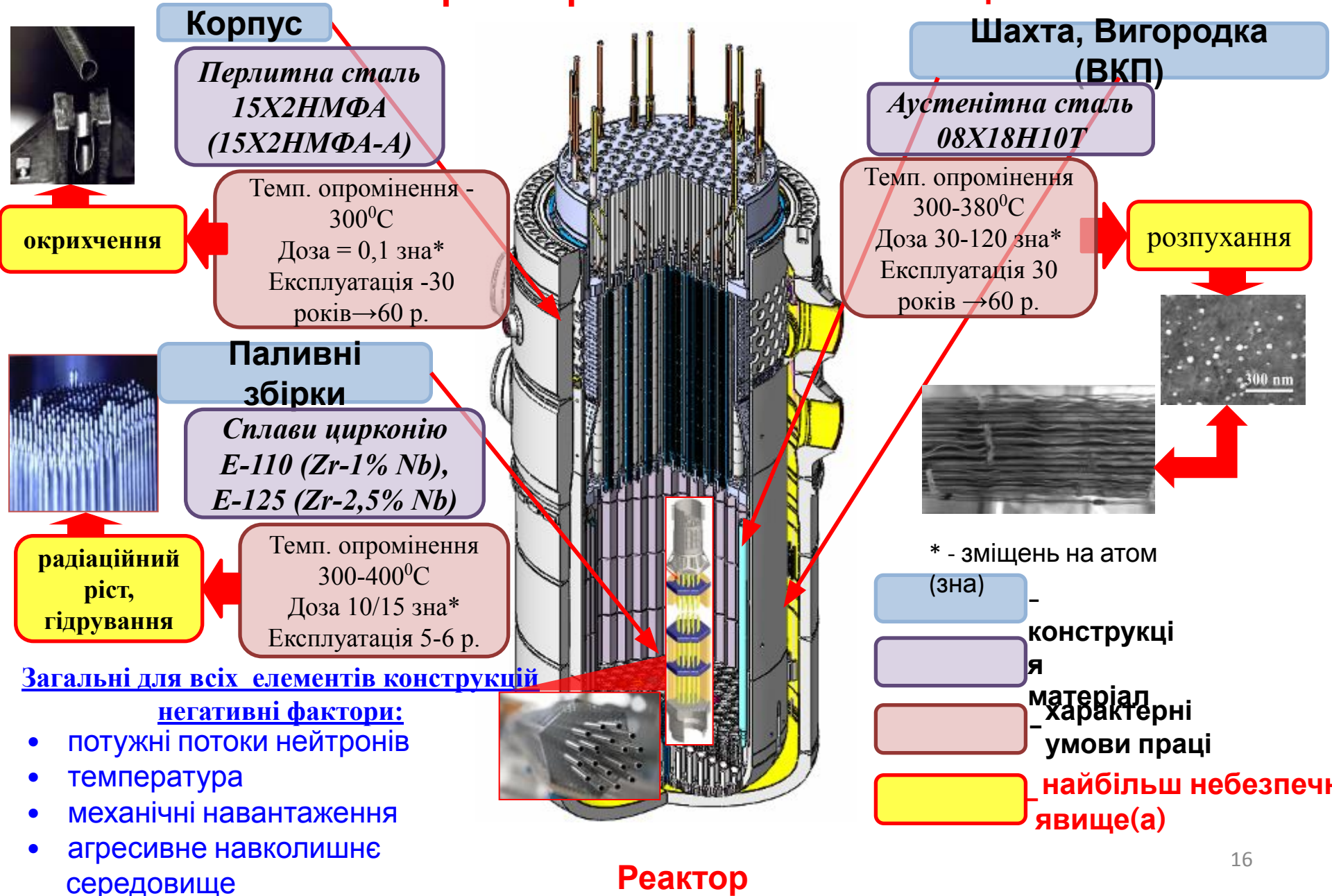
Для роботи в таких умовах матеріалознавці розробили та створили безліч сплавів, сталей та неметалічних матеріалів. Їх, до речі, часто відрізняє велика точність складу, йдеться про точність до 0,01% вмісту легуючих домішок.

На рисунку наведено цирконієвий кут діаграми Zr-Fe-O, де вказано допустимі значення вмісту кисню та заліза для сплавів типу Zr-1% Nb (E110, E110 опт., M5, E110 M), які використовуються для виготовлення виробів для ядерної енергетики. Зверніть увагу на те, що області допустимих значень легуючих елементів ~500 ppm, тобто 0,05%.



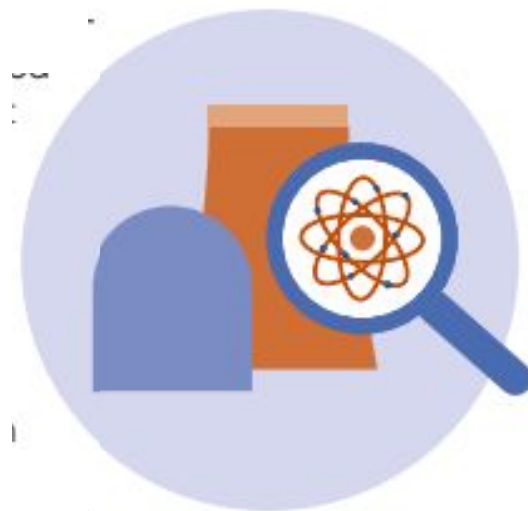
Цирконієвий кут діаграми Zr-Fe-O для різних за вмістом кисню та заліза цирконієвих сплавів

Конструкційні матеріали забезпечують безпеку та економіку безаварійної роботи атомних станцій



На сьогодні 60 з.н.а. є межею для сучасних ядерних матеріалів, причому такі матеріали ще й обмежені за робочою температурою і не можуть, наприклад, використовуватися в гарячих швидких реакторах.

Однак для майбутніх швидких реакторів ділення та для термоядерних реакторів потрібні матеріали, здатні стояти до 150 (а краще до 300) з.н.а. без руйнування, а у випадку термоядерних реакторів – стояти не просто у потоці нейтронів, а у потоці наденергійних нейтронів.



Нові виклики для матеріалів реакторів 4 покоління

6 типів реакторів Покоління 4:

Нові проблеми для матеріалів (Т, зна, корозія,

60 р. експлуатації, підвищення пасивної безпеки)

Тип реактору	температура теплоносія, (°C)	Максимальна доза, зна	Тиск, (Мпа)	Теплоносієм
--------------	------------------------------	-----------------------	-------------	-------------

SFR	550	200	0,1	Натрій
-----	-----	-----	-----	--------

LFR	800	200	0,1	Свинець
-----	-----	-----	-----	---------

GFR	850	200	7	Гелій/CO ₂
-----	-----	-----	---	-----------------------

MSR	1000	200	0,1	Розплав солей
-----	------	-----	-----	---------------

VHTR	1000	1-10	7	Гелій
------	------	------	---	-------

SCWR	500	15-67	25	Вода
------	-----	-------	----	------

Дія опромінення на матеріали

Якщо енергія, що передається атомам твердого тіла при взаємодії з опромінюванням, мала, то атомну структуру матеріалу, що опромінюється, можна вважати незмінною. У випадках впливу досить високоенергетичних частинок результатом перерозподілу отриманого імпульсу між атомами (і електронами) може бути вибивання останніх зі своїх рівноважних положень із утворенням залишкових порушень – *радіаційних дефектів*.

У неметалах важливу роль у формуванні дефектної структури відіграють електрони, а у речовинах з металевим типом провідності через сильне екранування достатньо обмежитися розглядом лише атомної підсистеми.

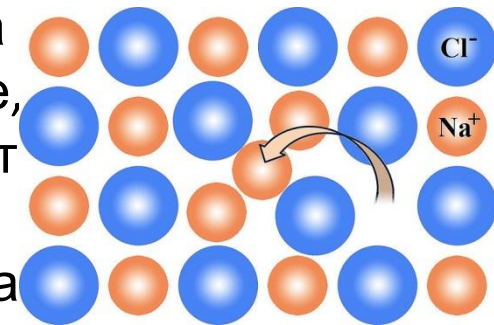
Процес радіаційного впливу можна представити як розгалужену послідовність зіткнень атомів, яка називається *каскадом зіткнень*.



Введемо кілька загальних визначень, які будуть використані надалі.

Первинно-вибитий атом (ПВА) – атом, який отримав надлишкову енергію безпосередньо від частинки, що налітає (нейтрона, іона, електрона, γ -кванта і т.п.). Початкова енергія ПВА зазвичай позначають як E . Надалі, де це спеціально не обумовлено, вважатимемо, що вся ця енергія витрачається лише на пружні зіткнення з атомами. Інакше частку енергії, витрачену на пружні зіткнення, позначають E_e , а що йде збудження електронів (непружні зіткнення) – E_i .

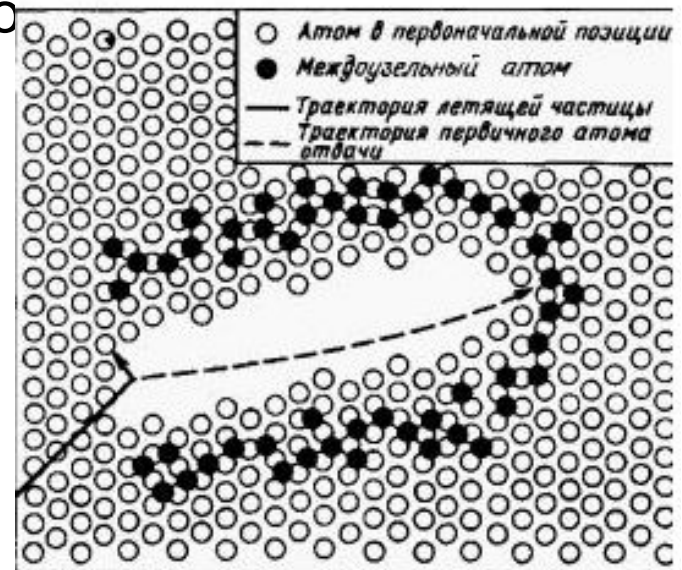
Пара Френкеля – елементарний радіаційний дефект, що є комбінацією з вакантного вузла кристалічної ґратки (вакансії) і міжвузлового атома. У розширювальному сенсі будь-яке радіаційне пошкодження у об'ємі матеріалу можна сукупність деякої кількості пар Френкеля. Однак це, не означає, що пошкодження обов'язково складаєт з окремих вакансій та міжвузлових атомів, а лише вказує на рівність кількостей міжвузлових атомів та вакантних вузлів.



Каскадна область пошкодження (КОП) – об'єм кристала, охоплений каскадним процесом і містить радіаційні дефекти, створені даним каскадом. Оскільки в процесі розвитку каскаду ця область збільшується і в ній відбувається народження, перерозподіл, а також знищення дефектів, цим терміном користуються головним чином для характеристики матеріалу після завершення каскадно

У ядрі каскаду утворюється пересичена вакансіями область - так звана збіднена зона.

Міжвузлові атоми в результаті заміщаючих зіткнень йдуть на периферію каскаду.



Флюенс нейтронів – величина, що дорівнює відношенню кількості нейтронів, що падають за даний інтервал часу на деяку поверхню, розташовану перпендикулярно до напрямку поширення нейтронного випромінювання, до площі цієї поверхні. Розмірність – нейтрон·м⁻².

Флакс дорівнює кількості нейтронів, що проходять через одиницю поверхні в одиницю часу.

Радіаційна стійкість – це здатність матеріалу протистояти впливу інтенсивних потоків опромінення, що викликає структурно-фазові зміни та погіршення вихідних фізико-механічних властивостей.

Створення радіаційно-стійких матеріалів дуже ускладнено через недостатні наші знання про природу радіаційно-індукованих явищ і практично не дослідженого діапазону дуже високих доз опромінення.

В останні десятиліття були відкриті та інтенсивно досліджуються різні фізичні явища, що протікають у твердих тілах під дією опромінення, що істотно впливають на їх структуру та властивості. Основними з них є: **радіаційне зростання (ріст), радіаційне розпухання, радіаційно-стимульовані та радіаційно-індуковані процеси, низькотемпературне та високотемпературне радіаційне окрихчення, радіаційна повзучість, радіаційне легування, ерозія поверхні** та інші.

У всіх цих явищах визначальну роль відіграють процеси зміщення атомів з вузлів кристалічної ґратки з утворенням **точкових радіаційних дефектів** та їх комплексів (кластерів, дислокаційних петель, пор та ін.) та **продукти ядерних реакцій** – нові елементи (трансмутанти). Радіаційні пошкодження, що виникають у твердих кристалічних тілах під дією опромінення, викликають порушення кристалічних ґраток і руйнують правильну структуру кристала.

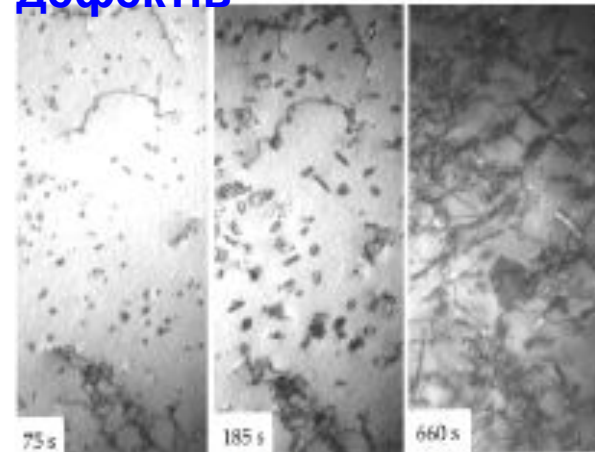
Вплив опромінення та матеріали

Радіаційне пошкодження ініціюється на **атомному рівні**, але макроскопічні ефекти, які мають велике значення для конструкторів і операторів, виникають внаслідок мікроструктурних змін, таких як ріст пор, дислокаційних петель і виділень. Ці мікроструктурні зміни можуть відбуватися на масштабному рівні, із скупчень кількох атомів, порівняльних з розміром зерна.

Опромінення впливає на деградацію вихідних фізико-механічних характеристик та розмірну стабільність, що є критичними параметрами для безпеки та економіки реакторів

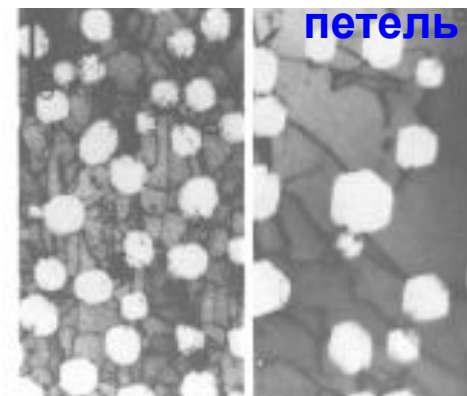
Причиною цього є еволюція структурно-фазового стану сталей та сплавів під час опромінення - вона починається на нанорівні, а призводить до макроефектів.

Еволюція точкових дефектів



Дислокаційна сітка

Зародження та ріст дислокаційних петель



Розпухання

Зародження та ріст пор

Явище **радіаційного розпухання** або **свелінг** визначається як зміною геометрії уранового зразка, так і великим зменшенням його щільності (густини).

Величина радіаційного розпухання S визначається як

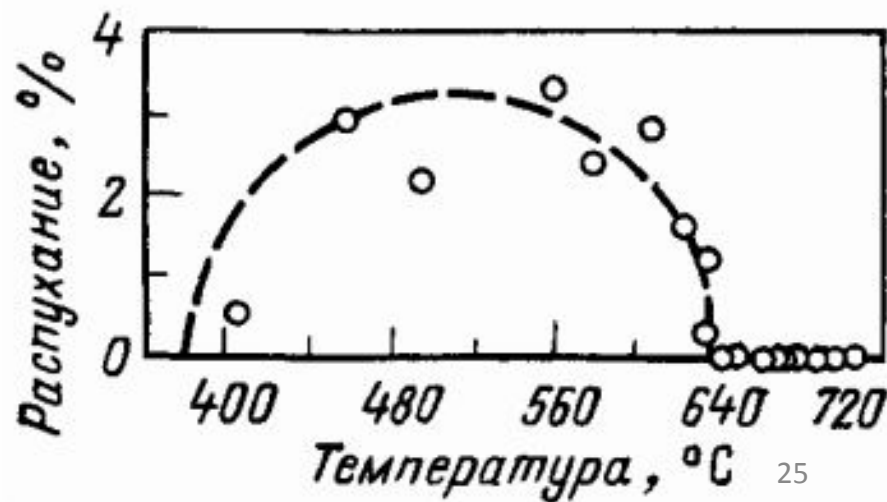
$$S = \Delta V / V,$$

де V – об'єм вихідного зразка, ΔV – зміна цього об'єму.

На початку явище радіаційного розпухання, обумовлене зародженням і зростанням пор у матеріалах, що не діляться під впливом опромінення високоенергетичними частинками, було передбачено теоретично. Пізніше це припущення було підтверджено експериментально при дослідженні зразків із корозійностійкої сталі SS316,

опромінених при температурах
270-560 °C флюенсом
(4,0-7,8)·10²² нейтр./см²

*Температурна залежність
розпухання сталі SS304 при опроміненні
в реакторі флюенсом 5·10²² нейтр./см²*



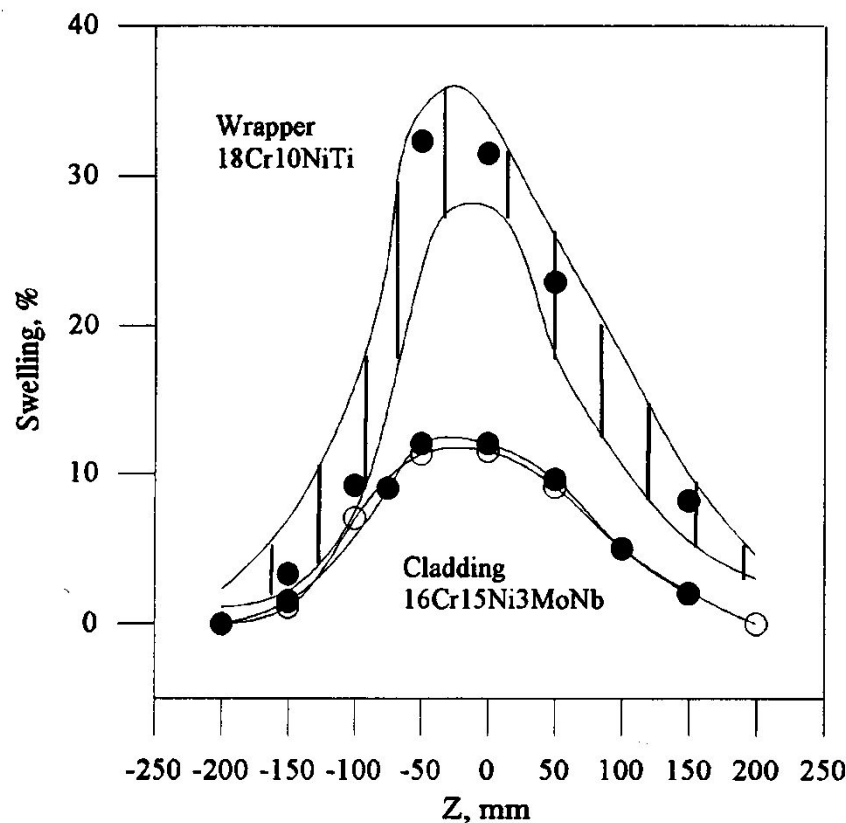
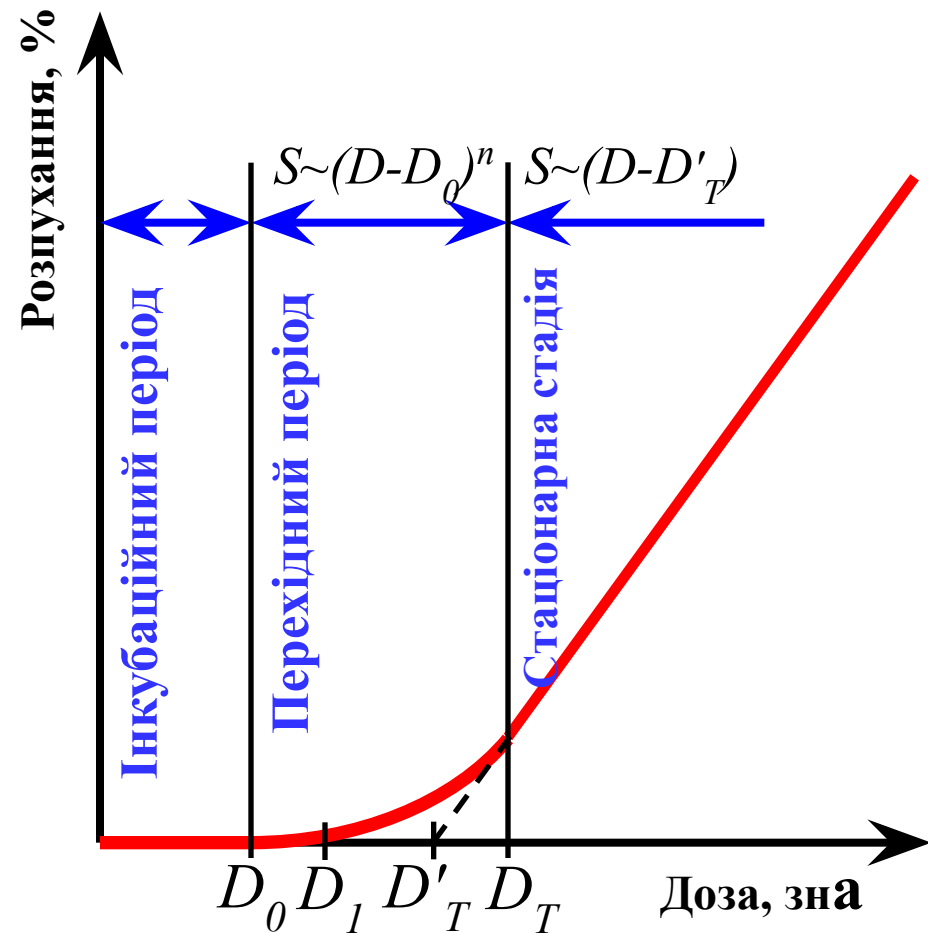
Розпухання оболонок і чохлів в активній зоні (БОР-60)

● - дані ПЕМ досліджень

○ - дані вимірювання діаметру

|| - дані зміни густини матеріалу

18Cr-10Ni-Ti: S=32%, D = 66 зна, $T_{\max} = 480^{\circ}\text{C}$



Радіаційні пошкодження, що утворюються в процесі опромінення, викликають суттєву зміну характеристик міцності матеріалів (меж текучості і міцності, твердості та ін.). При цьому, як правило, спостерігається **радіаційне зміцнення**, яке майже завжди супроводжується значним зменшенням пластичності матеріалів, що опромінюються - явище **радіаційного окрихчення**. Тому неважко припустити, що між радіаційним зміцненням і окрихченням існує певний зв'язок.

Зміцнення металів і сплавів, опромінених при відносно низьких температурах ($T < (0,3-0,4) T_{пл}$), супроводжується значним окрихченням (**низькотемпературне радіаційне окрихчення**), тобто зменшенням характеристик пластичності, ударної в'язкості та підвищенням температури переходу матеріалу з пластичного в крихкий стан.

Високотемпературне радіаційне окрихчення (ВТРО) є одним із факторів, що обмежують працездатність конструкційних матеріалів активної зони ядерних реакторів. Це явище полягає у значному та незворотному зниженні пластичності матеріалу, опроміненого при температурах вище $0,5T_{пл}$, причому з підвищенням температури ефект ВТРО посилюється.

На відміну від звичайного низькотемпературного радіаційного окрихчення ВТРО не усувається при тривалих високотемпературних

Окрихчення матеріалів корпусів реакторів

1) Первинне формування дефектів:

- формування кластерів точкових дефектів та дислокацій.

2) Наноструктурна еволюція

- формування виділень що збагачені Cu, а також **Mn - Ni, карбонитридів $(V,Cr)_7(C,N)_3$** ;
- сегрегація фосфора на границях зерен.

Опромінення веде до **зміцнення** зерен, за рахунок створення нових виділень та гальмування дислокацій.

Одночасно відбувається **знеміцнення** границь зерен через сегрегацію фосфору на границях зерен.

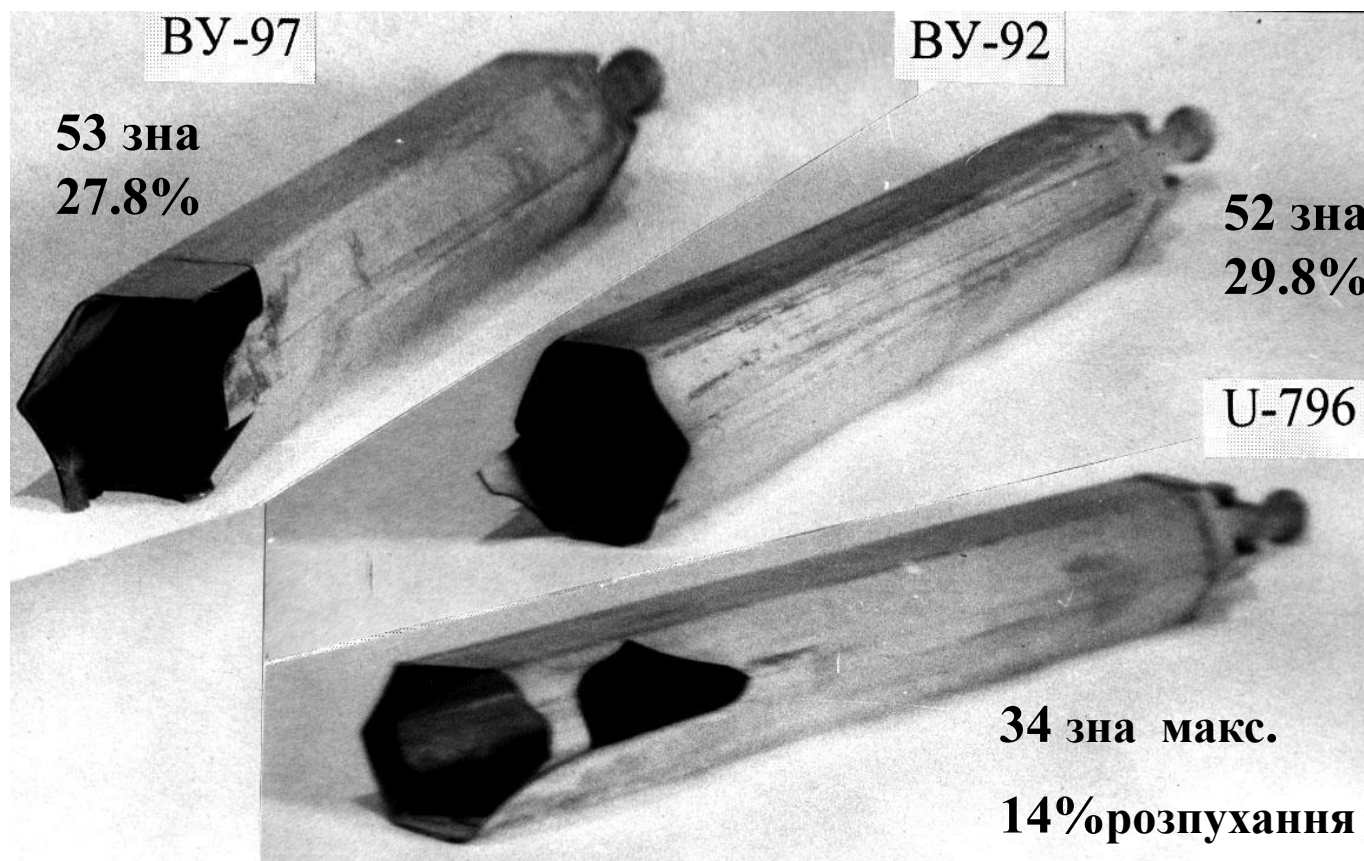


підвищення температури крихко-вязкого переходу

втрата пластичності та окрихчення



Зумовлене порами окрихчення в збірках із сталі Х18Н10Т (активна зона і рефлексор реактора ВОР-60)



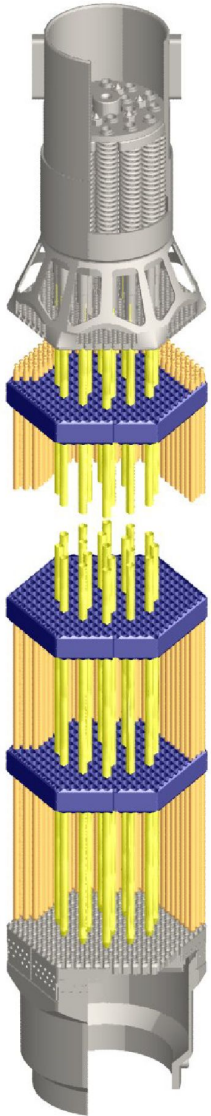
Усі чохла зруйновані в процесі операції заміни палива

Радіаційний ріст спостерігається як на матеріалах, що діляться, так і конструкційних матеріалах. В даний час під радіаційним ростом мають на увазі зміну розмірів кристалів при опроміненні без застосування зовнішнього навантаження, що не супроводжується помітною зміною об'єму.

Здатність «рости» під опроміненням є однією з своєрідних властивостей урану.

Анізотропні конструкційні матеріали, такі, як, наприклад, цирконій та його сплави, графіт та інші, за певних умов опромінення також зазнають радіаційного росту. Серед конструкційних матеріалів радіаційний ріст вперше було виявлено в опроміненому цирконії, що має ГЩУ ґратку. Пізніше з'явилися експериментальні докази того, що за певних умов явище радіаційного росту може виявлятися в металах та сплавах із ГЦК та ОЦК ґратками.

Сплави цирконію

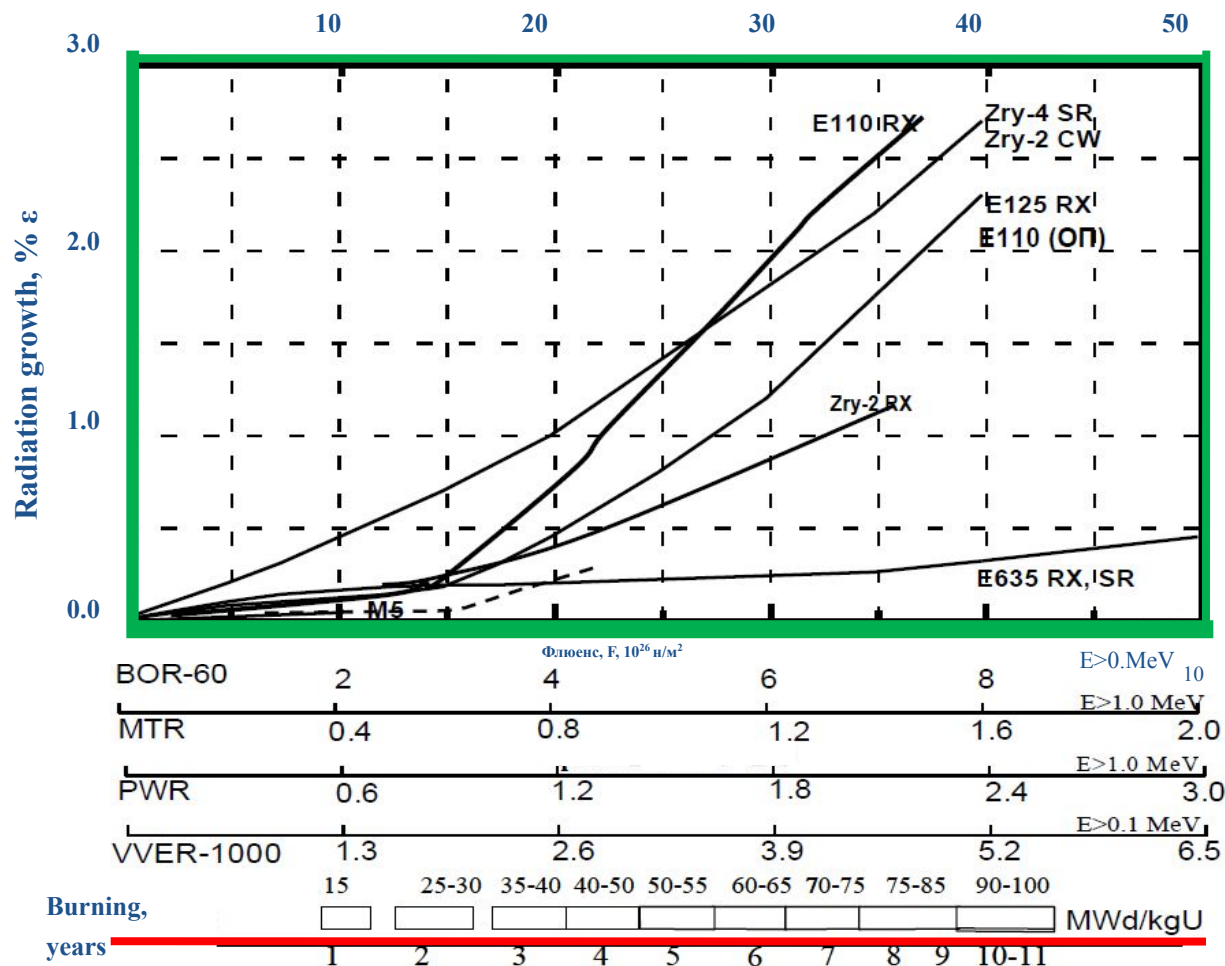


- В даний час використовуються цирконієві сплави *E110*, *E125* (леговані Nb), або *E635*, *Zry-2*, *Zry-4* (леговані Sn, Fe, Cr, Ni).
- Зараз твели і ТВЗ експлуатуються протягом 4-5 років з вигоранням палива до 50-60 МВт доба/кг урану.
- До явищ, які негативно впливають на експлуатаційні характеристики, відносять:
 - підвищену деформацію радіаційного росту (ДРР),
 - радіаційно-термічну повзучість (РТП),
 - корозію.

Деградаційні явища

- Наводнення
- Окислення
- Радіаційний ріст (зростання)

Радіаційне зростання Zr-сплавів



Радіаційне зростання Zr-сплавів в різних умовах опромінення (флюенс, вигорання, пошкоджуюча доза) комерційних (VVER, PWR) та дослідницьких (BOR-60, MTR) реакторів при 290-350 С

Механізм явища радіаційного росту Zr

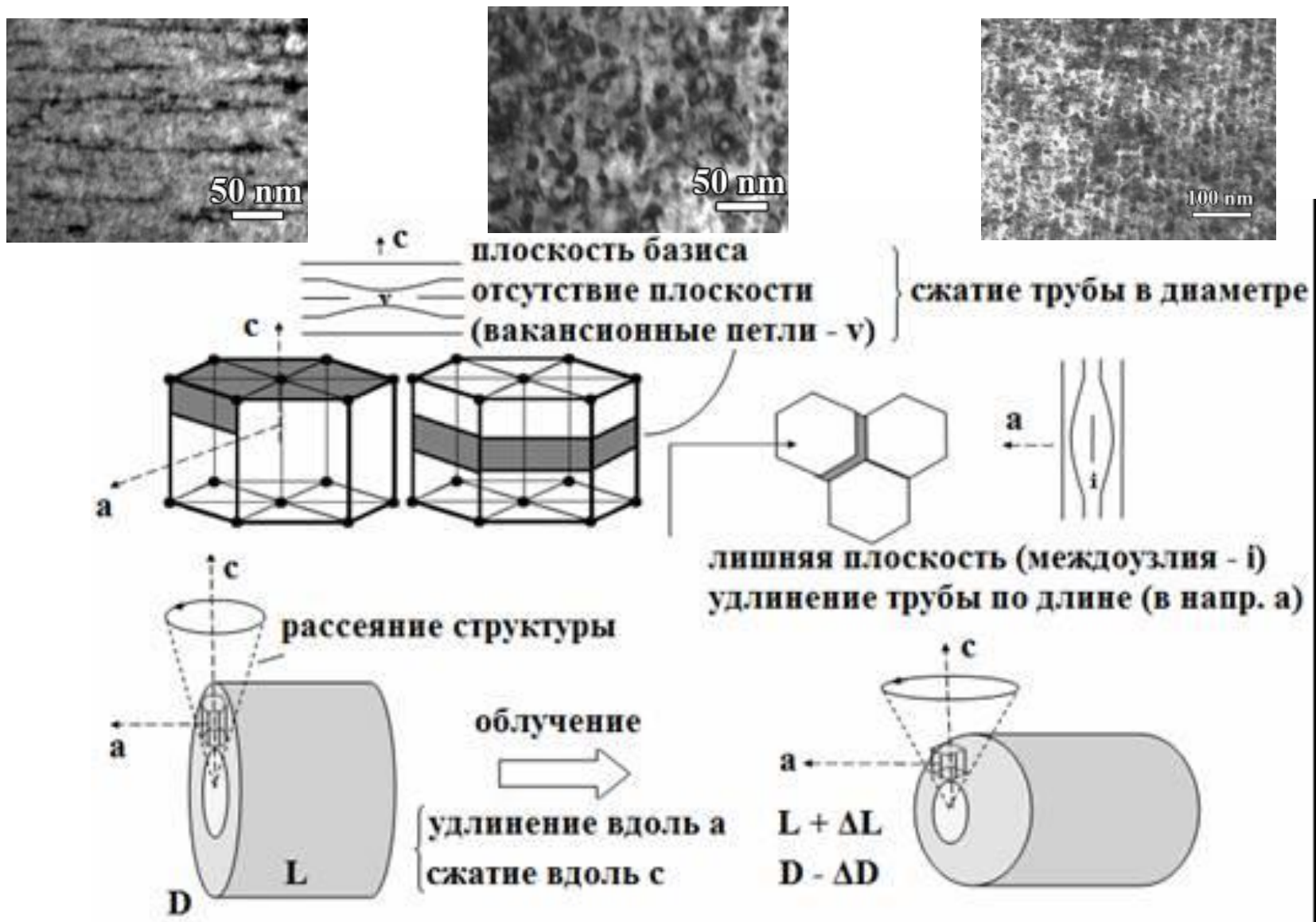
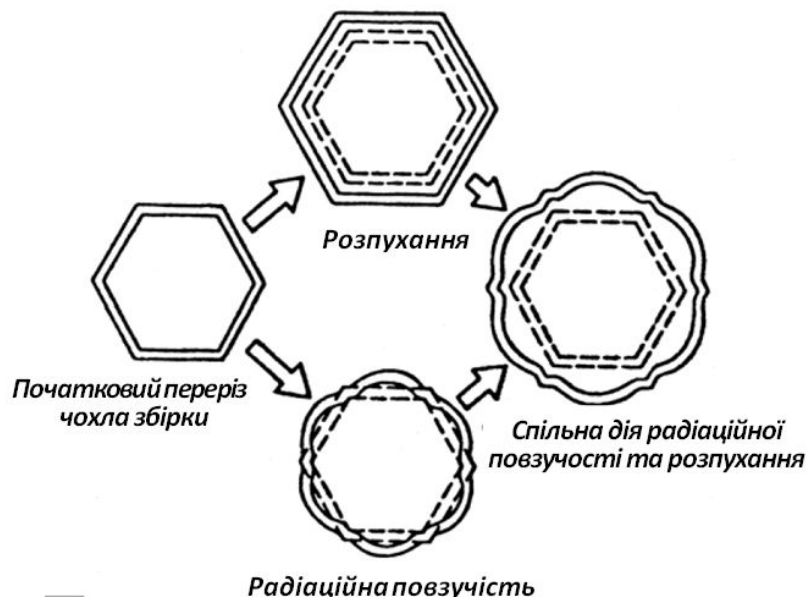


Схема впливу розподілу міжвузлових і вакансійних петель на радіаційний ріст оболонкової труби

Матеріали, що опромінюються знаходяться в напруженому стані, то однією з основних причин зміни їх розмірів є **повзучість**, яка значно посилюється під опроміненням. Повзучість – це деформація металів і сплавів при тривалому постійному напруженні, яке може бути нижче межі плинності.

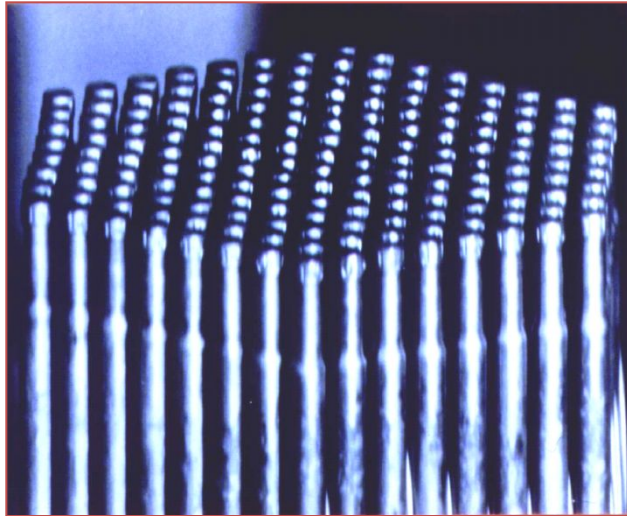
При опроміненні з'являється компонент **радіаційної повзучості**, і для більшості матеріалів швидкість радіаційної повзучості значно вища, ніж швидкість термічної п

Дуже небажані наслідки у формозміні конструктивних елементів ЯЕУ можуть статися внаслідок спільної дії розпухання та повзучості. Це видно на рисунку, шестигранний чохол ТВС реактора на швидких нейтронах збільшується в розмірі і грані його вигинаються.

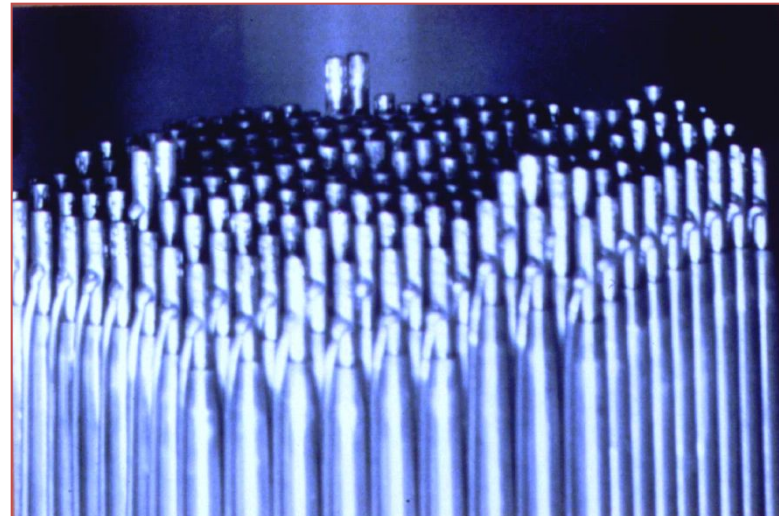


Спільна дія радіаційної повзучості та розпухання, що призводить до формозміни оболонки ТВС

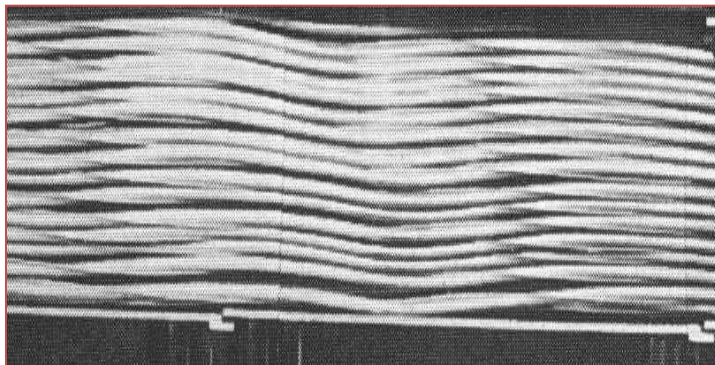
Приклади розпухання та радіаційної повзучості, що призводить до спотворення компонентів реактора при ~ 75 Зна



HT9 – немає розпухання



Нержавіюча сталь - розпухання



Взаємодія розпухання-повзучості з дотяною обмоткою для отримання спіральних штифтів у FFTF, але без прямих полумок.

- **Досягнення** високих показників вигорянь ядерного палива та необхідних рівнів безпеки лімітується недостатньою радіаційною стійкістю конструкційних матеріалів
- **Основні явища**, що обмежують використання матеріалів (окрихчення корпусів реакторів, низькотемпературне розпухання аустенітних сталей, зміна форми цирконієвих сплавів, розпухання оболонок та чохлів швидких реакторів) пов'язані між собою загальною фізикою явищ, які є характерними для матеріалів, що опромінюються, але проявляються у специфічних умовах.
- **Можливість використання** матеріалів у ядерних енергетичних установках певного типу та прояви відповідних явищ радіаційного пошкодження визначаються умовами опромінення в конкретних ЯЕУ – енергетичним спектром нейтронів, температурою опромінення тощо, оскільки саме ці умови визначають поведінку сукупності точкових дефектів та трансмутантів, що відповідають за механізми деградації та розмірної нестабільності.
- **Визначена ціль** – досягнення комерційно-привабливих рівней вигоряння ядерного палива - може бути досягнута тільки на основі сучасних наукових уявлень про роль фізичних механізмів мікроструктурної еволюції, що асоціюються із зміною первісних фізико-механічних властивостей під час опромінення.

Наразі радіаційне матеріалознавство є критичною технологією, яка дуже обмежує комерційні переваги та безпеку ядерної енергетики. Високі дози опромінення та температури, очікувані в удосконалених ядерних та термоядерних реакторах, вимагатимуть, безумовно, створення нових удосконалених матеріалів та принципово нових матеріалів.



Дякую за увагу!