

## **АННОТАЦИЯ**

диссертационной работы на тему:

**«МОДЕЛИРОВАНИЕ ВЫСОКОДОЗНЫХ РАДИАЦИОННЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ КОНСТРУКЦИОННЫХ РЕАКТОРНЫХ МАТЕРИАЛОВ ЗОНДОВЫМИ МЕССБАУЭРОВСКИМИ АТОМАМИ»**,  
представленной на соискание степени доктора философии (PhD) по специальности 6D071000 – «Материаловедение и технология новых материалов»

### **БЕДЕЛЬБЕКОВОЙ КАМШАТ АЗАТОВНЫ**

#### **Оценка современного состояния решаемой научной или научно-технологической проблемы (задачи)**

В настоящее время происходит существенная модернизация атомной энергетики и переход от реакторов на медленных нейтронах к реакторам на быстрых нейтронах, с повреждающими дозами больше 400 смещений на атом (сна). В связи с этим, требуется разработка перспективных реакторных материалов повышенной надежности, и замена традиционных ферритно-мартенситных сталей на стали аустенитного класса. Такие стали характеризуются малой наведенной радиоактивностью, слабым вакансионным и газовым распуханием, высокой устойчивостью к ползучести и высокотемпературному охрупчиванию.

Постепенный переход к ядерной и термоядерной энергетике приводит к тому, что разработка перспективных реакторных материалов, стойких против радиационного разрушения, управление их структурой и свойствами является важной научно-технической задачей радиационного материаловедения. Сложность проведения таких работ связана с наведенной радиоактивностью отработанных в реакторе материалов и длительным периодом наработки повреждающей дозы облучения (несколько лет). Для ее успешного решения требуется принципиально новый подход к методическому обеспечению экспериментов с облученными материалами, лишенный этих недостатков.

Приоритетные позиции в разработке перспективных реакторных материалов занимает метод имитационного облучения ионами тяжелых металлов, который сокращает сроки ресурсных испытаний и обеспечивает радиационную безопасность экспериментов. Оптимальными возможностями обладает неразрушающий метод облучения мессбауэровскими атомами железа. Он одновременно позволяет не только регистрировать радиационные повреждения материалов, но и моделировать (создавать) их на уровне кристаллической решетки.

#### **Основание и исходные данные для разработки темы**

Практика развития передовых стран показывает, что только ядерная и термоядерная энергетика может обеспечить их растущее энергопотребление. Вопрос о строительстве атомной электростанции в Республике Казахстан –

это вопрос времени и для этого имеются все предпосылки. По данным МАГАТЭ, запасы урана в стране оценены в 900 тысяч тонн. Кроме того, имеется опыт эксплуатации атомной электростанции с реактором на быстрых нейтронах, которая в течение более двадцати лет работала в г. Актау.

### **Обоснование необходимости проведения данной научно-исследовательской работы**

Наращивание мощности атомных реакторов с высокодозным облучением требует разработки реакторных материалов повышенной работоспособности и эксплуатационной надежности. Имеются Международные Программы, в которых приоритет отдается хромоникелевым сталям аустенитного класса, способным работать при уровнях повреждения свыше 200 смещений на атом в широком интервале рабочих температур. Необходимость интенсификации наработки повреждающих доз, сокращение сроков ресурсных испытаний и обеспечение безопасности проведения научных экспериментов составляет основное содержание данной научно-исследовательской работы. Учитывая мировые тенденции развития атомной энергетики, Казахстану целесообразно расширить свое участие в разработке перспективных и усовершенствования существующих реакторных материалов.

### **Сведения о планируемом научно-техническом уровне разработки**

Поиск и отработка эффективных и безопасных способов облучения, которые создают повреждения того же типа, что и при распаде ядерного горючего, определяет планируемый уровень научно-технической разработки. Перспективными в этом отношении является имитационные испытания путем облучения материалов на ускорителе высокоэнергетическими потоками ионов металлов или инертных газов. Использование в работе высокодозных мессбауэроских атомов железа позволяет одновременно решать две задачи – моделировать (создавать) радиационные повреждения и анализировать их тип.

### **Сведения о метрологическом обеспечении диссертации**

Экспериментальные исследования в период выполнения работы проводились на оборудовании и приборах, соответствующих «Закону об обеспечении единства измерений» и прошедших государственную поверку. Во всех случаях использованы единицы измерений, соответствующие метрологическим правилам и нормам Международной системы единиц СИ.

Для проведения научно-исследовательских работ было использовано следующее оборудование: мессбауэровский спектрометр MS-110Em; дифрактометр D 8 ADVANCE фирмы BRUKER (Германия); нанотвердомер «Наноскан-компакт» (Россия); электронный растровый сканирующий микроскоп LYRA3 TESCAN (Чехия).

Используемое оборудование и приборы сертифицированы и имеют документальное подтверждение соответствующими контрольными организациями (Алматинский филиал АО «НаЦЭкС» номер аттестата аккредитации KZ.P.02.0687 от 04.05.15 г).

### **Актуальность темы**

Актуальность темы обусловлена изменением энергетической политики мировых держав и постепенным переходом к ядерной и термоядерной энергетике с более высокими повреждающими дозами и более жесткими условиями эксплуатации конструкционных материалов. Необходимость перехода к реакторным материалам нового поколения требует поиска эффективных и безопасных методов облучения, моделирующих радиационные повреждения того же типа, что и при ядерном распаде. Определенной альтернативой могут служить имитационные испытания с использованием высокодозных потоков ионов тяжелых металлов, полученных на ускорителях разного типа.

### **Новизна темы**

Разработка имитационной методики облучения с использованием мессбауэровских атомов  $^{57}\text{Fe}$  позволяет моделировать радиационные повреждения в реакторных материалах на ускорителе тяжелых элементов. Такая методика предоставляет возможность создавать радиационные повреждения того же типа, что и при распаде ядерного горючего, идентифицировать их тип, а также исключить наведенную радиоактивность, сократить сроки набора повреждающих доз, определить влияние облучения на структурно-фазовое состояние и свойства облученных материалов. Выбор и отработка режимов моделирования для получения объективной информации о радиационных повреждениях характеризует новизну и научно-практическую значимость темы исследования.

### **Связь данной работы с другими научно-исследовательскими работами**

Диссертационная работа выполнена в РГП Институт ядерной физики Республики Казахстан в лаборатории ядерной гамма-резонансной спектроскопии в рамках научно-технической программы «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» (Грант № 0381/ГФ4) совместно с Московским государственным университетом им. М.В. Ломоносова (отдел физики атомного ядра НИИЯФ).

**Цель исследования:** разработать имитационный метод моделирования радиационных повреждений при облучении реакторных материалов на ускорителях заряженных частиц высокодозными зондовыми атомами  $^{57}\text{Fe}$ .

**Объекты исследования:** фольги молибдена и тантала, конструкционные нержавеющие стали аустенитного класса – 12X18H10T, AISI 304 и AISI 316.

**Предмет исследования :** влияние высокодозного облучения тяжелыми ионами  $^{57}\text{Fe}$  на тип радиационных повреждений, структурно-фазовое состояние и свойства молибдена и тантала и реальных конструкционных сталей 12X18H10T, AISI 304 и AISI 316, используемых в активной зоне атомного реактора.

## **Задачи исследования, их место в выполнении научно-исследовательской работы в целом**

- 1) Изготовить опытные образцы чистых металлов и сталей трех марок 12X18H10T, AISI 304 и AISI 316 в виде тонких фольг и провести облучение ионами железа  $^{57}\text{Fe}$  с энергией 1 МэВ и дозой  $5 \times 10^{16}$  ион/см<sup>2</sup>;
- 2) Получить и рассчитать основные характеристики взаимодействия облучения ионами железа  $^{57}\text{Fe}$  по программе SRIM – 2008, определить их структурно-ориентационное расположение в кристаллических решетках молибдена и тантала, рассчитать количество образующихся дефектов;
- 3) Получить и обработать мессбауэровские спектры всех марок сталей, провести рентгенографические и электронографические исследования, обработать, проанализировать полученные данные, сделать обоснованные выводы;
- 4) Измерить нанотвердость в исходном и отожженном состоянии, оценить влияние состояния на величину радиационного наклепа разных типов сталей в зависимости от глубины погружения индентора.

Решение поставленных задач позволит обработать метод имитационного облучения высокодозным потоком ионов железа  $^{57}\text{Fe}$  для моделирования радиационных повреждений, аналогичных образующимся при распаде ядерного горючего.

### **Методологическая база исследований**

Для решения задачи и достижения поставленной цели использованы следующие методы и методики исследования:

- высокодозное облучение ионами  $^{57}\text{Fe}$  на перезарядном ускорителе тяжелых ионов УСП-2-1;
- конверсионная мессбауэровская спектроскопия по электронному каналу (КЭМС) и в режиме на поглощение (МС);
- компьютерный пакет программы STRIM – 2008
- компьютерный пакет программы SpectrRelax
- EXAFS – спектроскопия.

### **Положения, выносимые на защиту**

– результаты моделирования взаимодействия имплантированных ионов железа (проективного пробега, числа вакансий/ион, количества смещений на атом) по программе SRIM-2008 и их зависимости от свойств молибдена и тантала;

– строение мессбауэровских спектров электронов конверсии (КЭМС) и МС на пропускание на ядрах  $^{57}\text{Fe}$ , результаты рентгеновской дифрактометрии и EXAFS спектроскопии по определению состояния и дефектности матриц молибдена и тантала;

– строение мессбауэровского спектра электронов конверсии (КЭМС) на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  в нержавеющей аустенитных промышленных сталях 12X18H10T, AISI 316, AISI 304 в зависимости от содержания никеля;

– результаты рентгеновской дифрактометрии и сканирующей электронной микроскопии сталей 12X18H10T, AISI 316, AISI 304 в различных

состояниях – до, после облучения и после отжига, образование «мартенсита напряжения»;

– результаты электронной микроскопии приповерхностных слоев и измерения нанотвердости для определения величины радиационного наклепа сталей 12X18H10T, AISI 316, AISI 304, находящихся в разных состояниях, в зависимости от глубины внедрения индентора.

### **Основные результаты**

– Изготовлены и облучены высокодозным потоком мессбауэровских атомов железа  $^{57}\text{Fe}$  фольги чистых металлов (молибден, тантал) и аустенитных сталей разных марок 12X18H10T, AISI 316 и AISI 304 на ускорителе тяжелых ионов.

– Получены мессбауэровские спектры и рассчитаны основные характеристики взаимодействия имплантированных ионов железа с кристаллическими решетками молибдена, тантала и аустенитных сталей разных марок. Определены количественные соотношения между образующимися радиационными дефектами и инициированными облучением новыми фазами.

– Впервые определено структурно-ориентационное расположение имплантированных ионов железа и идентифицирован тип радиационных повреждений в виде твердых растворов – замещения в молибдене и внедрения в тантале. Впервые установлено, что этот процесс сопровождается сильным измельчением зерна по типу первичной рекристаллизации, инициируемой облучением.

– Установлено, что при имплантировании (внедрении) ионов железа в кристаллические решетки трех марок аустенитных сталей развивается инициируемое облучением  $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращение с образованием дефектного «мартенсита напряжения», стабильность и количество которого лимитируется содержанием никеля.

– Показано (по величине нанотвердости), что все исследованные стали претерпевают радиационный наклеп, который при температурах отжига, близких к рабочим температурам активной зоны реактора, в сталях с повышенным содержанием никеля практически полностью снимается, чем обеспечивается более высокая стабильность их эксплуатационных свойств.

На основании полученных результатов можно сделать вывод о том, что облучение высокодозным потоком ионов  $^{57}\text{Fe}$  с энергией 1 МэВ позволяет создавать (моделировать) в реакторных материалах радиационные повреждения того же типа (вакансии, межузельные и замещенные атомы), что образуются при радиоактивном распаде в атомных реакторах, а также инициировать структурно-фазовые превращения за счет имплантации ионов железа в их кристаллические решетки.

### **Практическая значимость исследования**

Результаты исследований, полученные с использованием облучения высокодозным потоком тяжелых ионов, найдут применение для разработки и модернизации имитационных методов радиационного воздействия на

реакторные конструкционные материалы. Эффективность и безопасность метода иллюстрируется получением повышенной дозы радиационных повреждений без наведенной радиоактивности и малым временем ее наработки по сравнению с материалами, отработавшими в активной зоне реактора. Показано, что облучение мессбауровскими атомами железа является универсальным и может быть использовано не только для сталей, но и материалов на другой основе.

Важным фактором, указывающим на практическую значимость работы, является значительное сокращение срока ресурсных испытаний для оценки надежности и работоспособности конструкционных материалов активной зоны реактора. Экспрессный метод облучения (часы вместо месяцев) упрощает решение проблемы их пригодности для обеспечения безопасной работы ядерных установок, позволяет объективно оценивать эксплуатационные характеристики и прогнозировать поведение при высоких повреждающих дозах облучения.

Практическая значимость полученных результатов состоит также в том, что на примере тугоплавких молибдена и тантала проиллюстрирована возможность образования высокодисперсной структуры, которая эффективно сопротивляется коррозионному разрушению. По этой причине они могут использоваться в качестве элементов трубопровода для металлических теплоносителей в первом контуре реактора. Тот факт, что стали аустенитного класса с повышенным содержанием  $\gamma$ -стабилизирующего никеля, более устойчивы к радиационным повреждениям, вызываемым высокодозным облучением, показывает, что они имеют неоспоримое преимущество. В качестве дополнительного легирующего элемента целесообразно использование молибдена, как показано на примере стали AISI 316.

#### **Апробация работы**

Основные результаты диссертации докладывались и обсуждались на отечественных и зарубежных международных конференциях: International conference on the applications of the Mössbauer effect, in September 03-08, 2017, Saint-Petersburg, Russia; International scientific forum «Nuclear science and technologies». September 12-15, 2017, Almaty, Republic of Kazakhstan; XV Международная конференция «Мёссбауэровская спектроскопия и её применения», 10 - 16 сентября, Сочи, Россия; четвертый междисциплинарный научный форум с международным участием «Новые материалы и перспективные технологии», 27-30 ноября 2018 г, Москва, Россия; XLIX Международная Тулиновская конференция по Физике Взаимодействия Заряженных Частиц с Кристаллами, МГУ им. М. В. Ломоносова, 28 – 30 мая 2019 г, Москва, Россия; 12-я Международная конференция «Ядерная и радиационная физика», 24-27 июня 2019 года, Алматы, Казахстан; XXIV Международной конференции Взаимодействие ионов с поверхностью «ВИП-2019», 19 - 23 августа 2019 г. Москва, Россия; IX Международной конференции «Современные проблемы ядерной физики и ядерных технологий» 24-27 сентября 2019, Ташкент, Узбекистан.

**Публикации:** по теме диссертационной работы опубликовано 19 печатных работ, в том числе 2 статьи в журналах, рецензируемых базой данных Scopus, 4 статьи из списка научных журналов, рекомендованных ККСОН МОН РК, 8 тезисов докладов, 5 статей опубликованных в зарубежных изданиях.

**Структура и объем диссертации.** Диссертация состоит из «Введения», 4-х разделов, «Заключения» и 1-го «Приложения». Работа изложена на 127 страницах машинописного текста, содержит 25 таблиц и 57 рисунков.