

На правах рукописи



ФЕДОТОВА Светлана Владимировна

Фазообразование в сталях корпусов и внутрикорпусных устройств легководных реакторов в условиях нейтронного облучения: закономерности, прогнозирование, связь со служебными характеристиками

Специальность: 2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность

Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
доктора технических наук

Москва – 2026

Работа выполнена в Национальном исследовательском центре «Курчатовский институт» (НИЦ «Курчатовский институт»)

Научный консультант: *Кулешова Евгения Анатольевна,*
доктор технических наук, профессор,
главный научный сотрудник
Отделения реакторных материалов и технологий
НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва

**Официальные
оппоненты:** *Козлов Александр Владимирович,*
доктор технических наук, главный научный
сотрудник лаборатории механических свойств,
Институт физики металлов имени
М.Н. Михеева Уральского отделения Российской
академии наук (ИФМ УрО РАН), г. Екатеринбург

Литовченко Игорь Юрьевич,
доктор физико-математических наук, доцент,
заведующий лабораторией физического
материаловедения сталей и сплавов, Институт
физики прочности и материаловедения имени
В.Е. Панина Сибирского отделения Российской
академии наук (ИФПМ СО РАН), г. Томск

Колтишон Эдуард Юльевич,
доктор технических наук, профессор, главный
научный сотрудник
Института металлургии и машиностроения
ГНЦ РФ АО «НПО «ЦНИИТМАШ», г. Москва

Ведущая организация: ФГАОУ ВО «Национальный исследовательский
технологический университет «МИСИС», г. Москва

Защита диссертации состоится «26» мая 2026 г., начало в 14 ч.00 мин. на заседании диссертационного совета 02.1.003.08 на базе НИЦ «Курчатовский институт» по адресу: 123182, г. Москва, пл. Академика Курчатова, д.1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЦ «Курчатовский институт» и на сайте www.nrcki.ru

Автореферат разослан «__» _____ 2026 г.

Ученый секретарь диссертационного совета,
кандидат физико-математических наук



Д.А. Шкаровский

© Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», 2026

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

Энергетическая стратегия Российской Федерации на период до 2050 года предусматривает стратегическую задачу увеличения доли атомной генерации в общей выработке электроэнергии до 25 % к 2050 году (при текущем уровне ~20 %). Больше 65% всех действующих в мире атомных станций приближаются к концу своего первоначально предусмотренного проектом срока эксплуатации (около 30–40 лет) или уже достигли его. Продление срока службы действующих АЭС экономически целесообразно и необходимо для предотвращения резкого снижения глобальной атомной энергетической мощности к 2030 году, а также для перехода на низкоуглеродную энергетику и сдерживания климатических изменений. Данная стратегия поддержана МАГАТЭ и принята в качестве стандартной практики во всем мире, реализуемой более чем на 100 энергоблоках. Таким образом, для устойчивого развития мировой атомной энергетики необходимо, наряду со строительством новых реакторов с увеличенным назначенным сроком службы до 60–80 лет (проекты поколения III или III+), продление срока службы действующих АЭС. В комплекс первоочередных мер по решению основных задач в области атомной энергетики России также входит обеспечение устойчивой работы действующих энергоблоков атомных электростанций, в том числе за счет продления их сроков эксплуатации.

Ключевую роль в решении актуальных задач атомной энергетики играют конструкционные материалы, которые должны выдержать как все увеличивающиеся радиационные нагрузки при продлении сроков эксплуатации действующих реакторов, так и удовлетворять ужесточающимся нормативным требованиям, предъявляемым к новым проектам. К компонентам легководных реакторов с ограниченным сроком службы, замена которых технически крайне сложна и из-за очень высокой стоимости не предусмотрена, относят корпус реактора (КР) и элементы внутрикорпусных устройств (ВКУ). Поэтому сохранение их структурной целостности в течение всего срока службы, включая аварийные ситуации, является одним из основных требований длительной и безопасной эксплуатации энергоблоков АЭС.

Эксплуатация материалов КР и ВКУ в условиях интенсивного нейтронного облучения, высокой температуры и напряжений сопровождается накоплением радиационных повреждений на нано- и микромасштабном уровнях. Это определяет деградацию механических свойств сталей в процессе эксплуатации, что потенциально может привести к недопустимой преждевременной потере требуемых уровней служебных характеристик и растрескиванию элементов конструкций, из них изготовленных.

Радиационное упрочнение сталей КР и ВКУ, вызванное процессами фазообразования и кластеризации точечных дефектов, является одним из факторов, определяющих их ресурсоспособность. В то же время действующие нормативные документы (например, ГОСТ Р 59115.14-2021 и ГОСТ Р 59429-2021) содержат эмпирические

температурно-дозовые зависимости изменения механических характеристик без их строгой взаимосвязи с механизмами деградации структуры. Это ограничивает их прогностическую способность, особенно в условиях, выходящих за рамки первоначального опыта эксплуатации (увеличение повреждающей дозы при продлении сроков службы, изменение состава сталей).

При обосновании работоспособности материалов КР и ВКУ действующих АЭС при продлении сроков эксплуатации, а также при разработке и аттестации материалов для реакторов новых проектов, требуется надежная информация об изменениях структуры при воздействии эксплуатационных параметров. Глубокое понимание процессов деградации свойств сталей КР и ВКУ при эксплуатации, а также выявление взаимосвязи между различными изменениями структуры и служебными характеристиками материала, позволяет уточнить функциональный вид нормативных зависимостей, повысить их научную обоснованность, а также расширяет возможности прогнозирования поведения соответствующих материалов.

В этой связи обобщение закономерностей фазообразования и уточнение механизмов радиационно-индуцированной деградации микроструктуры и служебных характеристик применяемых и перспективных сталей КР и ВКУ является критически важной и актуальной задачей, направленной на переход от эмпирических корреляций к физически обоснованным моделям, обеспечивающим повышение достоверности прогнозов и снижение неопределенности при оценке остаточного ресурса. Решение этой задачи напрямую способствует обеспечению безопасности, экономической эффективности и технологической независимости атомной отрасли, что соответствует приоритетам научно-технологического развития Российской Федерации.

Цели и задачи исследования

Целью работы являлся анализ закономерностей фазообразования для уточнения физических механизмов радиационной повреждаемости и прогнозирования деградации служебных характеристик сталей корпусов и внутрикорпусных устройств легководных реакторов.

Для выполнения цели работы необходимо было решить следующие задачи:

1. Оптимизировать и верифицировать методику обработки и интерпретации данных, полученных методом атомно-зондовой томографии (АЗТ), применительно к исследованию фазообразования в реакторных материалах (сталях КР и ВКУ), обеспечивающую сопоставимость оценок параметров преципитатов между различными исследователями.
2. Разработать корректирующие подходы, позволяющие согласовать результаты, полученные разными исследователями, с целью обобщения и анализа собственных и литературных данных.
3. Выполнить АЗТ-исследования применяемых и перспективных сталей КР и ВКУ ВВЭР различного состава (проектов ВВЭР-440, ВВЭР-1000/1200, ВВЭР-ТОИ, ВВЭР-

СКД), облученных в условиях, приближенных к реальным условиям их эксплуатации (включая циклы «облучение-отжиг»).

4. Сформировать репрезентативную интегральную «Базу данных параметров преципитатов» (далее «База данных»), объединяющую собственные и верифицированные литературные данные по сталям КР и ВКУ реакторов ВВЭР и РWR широкого химического состава, облученных в энергетических и исследовательских реакторах до повреждающих доз, соответствующих эксплуатации элементов КР и ВКУ легководных реакторов, включая продленный срок до 60–90 лет.

5. Обосновать общую концепцию фазообразования в сталях КР и ВКУ в зависимости от химического состава материалов и условий облучения: закономерности и механизмы образования преципитатов на различных стадиях эксплуатации (включая циклы «облучение-отжиг»), а также взаимосвязь с другими механизмами деградации структуры (радиационно-индуцированная сегрегация, набухание, образование дислокационных петель).

6. Разработать и верифицировать подход к прогнозированию радиационного упрочнения на основе определения радиационно-индуцированных параметров структуры и с учетом их взаимосвязи в процессе облучения.

7. Разработать модель машинного обучения на основе сформированной «Базы данных параметров преципитатов» для прогнозирования радиационного упрочнения в широком диапазоне составов и условий эксплуатации.

Научная новизна работы

1. Впервые разработана и верифицирована (в том числе в международных раунд-робин экспериментах) методология анализа и совместной интерпретации результатов АЗТ-исследований реакторных сталей, что позволило обеспечить сопоставимость результатов и устранило системные расхождения в интерпретации данных, полученных разными исследователями, и заложило методологическую основу для прогнозирования радиационного фазообразования.

2. Впервые сформирована репрезентативная «База данных параметров преципитатов», объединяющая собственные и литературные данные для сталей КР и ВКУ реакторов ВВЭР и РWR в широком диапазоне химических составов и условий облучения (420 элементов, сформированных на основе 880 экспериментальных точек).

3. Впервые обоснована общая концепция фазообразования в сталях КР и ВКУ, согласованная с современными представлениями о физических механизмах зарождения (на комплексах вакансий с надразмерными атомами (Cu/Cu–Al–Ti) или в результате радиационно-индуцированной сегрегации атомов (Ni–Si–Mn/Ni–Si–Ti) на кластерах межузельных точечных дефектов) и роста преципитатов (от предвыделений к выделениям при повышении дозы/температуры облучения) в зависимости химического состава сталей и условий облучения.

4. Впервые физически обосновано и экспериментально доказано, что увеличение скорости набора дозы (флакса быстрых нейтронов) приводит к увеличению плотности преципитатов (выделений и предвыделений) при уменьшении их размеров. При этом объемная доля предвыделений малого размера практически не зависит от флакса нейтронов, что свидетельствует о радиационной природе их образования, тогда как объемная доля более крупных выделений зависит от флакса, что свидетельствует о значимом термическом вкладе в их рост.
5. Впервые физически обосновано и экспериментально подтверждено снижение темпа образования преципитатов в сталях КР и ВКУ с увеличением дозы облучения (флюенса): для сталей КР процессы фазообразования протекают во всем интервале времен/доз эксплуатации, а для сталей ВКУ – в значительной степени завершаются уже при дозах ~10–15 сна.
6. Впервые установлена и объяснена с точки зрения силы стоков закономерная взаимосвязь фазообразования с другими процессами радиационной деградации структуры сталей КР и ВКУ (эволюция дислокационной структуры, порообразование, радиационно-индуцированная сегрегация), что позволило системно описать эволюцию микроструктуры, обусловленную едиными механизмами, контролируруемыми процессами миграции и поглощения точечных дефектов.
7. Впервые сформулирован, обоснован и верифицирован для сформированной «Базы данных» универсальный подход к выбору коэффициентов барьерной прочности структурных элементов с учетом взаимосвязи между ними, а также степени структурного совершенства преципитатов.
8. Впервые выполнено прогнозирование параметров преципитатов и соответствующего радиационного упрочнения сталей КР заданного состава на любом этапе их эксплуатации с использованием разработанной модели машинного обучения на основе сформированной «Базы данных».

Практическая значимость работы

1. Полученные результаты устанавливают физически обоснованную взаимосвязь между эволюцией микроструктуры и деградацией механических свойств, что позволяет повысить надежность и достоверность прогнозирования поведения сталей КР и ВКУ на различных стадиях эксплуатации, включая продленный ресурс, в том числе в циклах «облучение-отжиг», а также уточнить функциональный вид нормативных зависимостей.
2. Сформированная репрезентативная «База данных параметров преципитатов» способствует усовершенствованию и верификации различных моделей радиационной повреждаемости материалов с учетом особенностей фазообразования, а также валидации результатов имитационных экспериментов.

3. Обоснована возможность корректного прогнозирования радиационного упрочнения сталей КР по результатам ускоренных облучений без поправок. При этом показана необходимость учета влияния скорости набора дозы в сталях ВКУ.
4. Разработанная методология прогнозирования радиационного упрочнения обеспечивает экспресс-оценку прочностных характеристик сталей КР и ВКУ в рамках цифрового материаловедения без проведения механических испытаний и может быть использована для оптимизации составов существующих и разработки новых радиационно-стойких материалов для перспективных проектов ВВЭР, что повышает представительность и сокращает сроки их аттестации, чем усиливает конкурентоспособность российских реакторных технологий.
5. Полученные результаты в составе комплексного исследования структуры и свойств сталей КР и ВКУ были использованы в оценке работоспособности элементов реакторных установок КР и ВКУ при обосновании срока безопасной эксплуатации действующих и проектируемых АЭС с ВВЭР, в том числе при их продленном сроке службы после восстановительного отжига.

Степень достоверности и апробация результатов

Достоверность полученных в работе результатов подтверждается большим объемом полученных экспериментальных данных для широкого круга исследованных материалов с различным легированием с использованием комплекса современных аналитических методов исследования наноструктуры по аттестованным методикам, а в случае АЗТ – по верифицированной методике в рамках международных раунд-робин экспериментов; применением при обработке данных методов машинного обучения, а также согласованностью полученных результатов и выводов с имеющимися экспериментальными и теоретическими литературными данными и существующими научными представлениями о радиационной повреждаемости структуры и свойств сталей КР и ВКУ.

Основные положения и результаты работы представлены в 20 статьях (всего по теме диссертации – 44), из них 18 в журналах, рекомендованных ВАК, 1 учебном пособии и 1 монографии, а также были представлены на 18 международных конференциях и семинарах. Результаты работ удостоены: премии им. И.В. Курчатова за лучшую работу среди молодых научных сотрудников и инженеров-исследователей 2011 г.; премий им. академика А.П. Александрова за лучшую научную работу 2013, 2014, 2016г.г.; премии имени И.В. Курчатова за лучшую работу в области научных исследований 2019 г.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Разработанная и верифицированная (в международных раунд-робин экспериментах) методология анализа и интерпретации результатов атомно-зондовой томографии применительно к облученным материалам.

2. Сформированная репрезентативная «База данных параметров преципитатов», объединяющая собственные и литературные данные для сталей КР и ВКУ реакторов ВВЭР и РWR в широком диапазоне составов и условий облучения (температур, флюенсов и флаксов быстрых нейтронов), соответствующих продленному сроку службы до 60–90 лет, включая циклы «облучение-восстановительный отжиг».
3. Физически обоснованная общая концепция фазообразования в сталях КР и ВКУ в зависимости от состава и условий облучения, основанная на выявленных закономерностях и современных представлениях о диффузионных процессах, происходящих в материалах под воздействием облучения.
4. Экспериментально установленное различное влияние флакса быстрых нейтронов на фазообразование и радиационное упрочнение в сталях КР и ВКУ, которое определяется доминирующими в них механизмами образования преципитатов.
5. Физически обоснованное и экспериментально подтвержденное снижение темпа образования преципитатов в сталях КР и ВКУ с увеличением флюенса быстрых нейтронов.
6. Установленная закономерная взаимосвязь фазообразования и других процессов радиационной деградации структуры сталей КР и ВКУ, контролируемых миграцией точечных дефектов, а также их совместное влияние на прочностные характеристики материала.
7. Разработанный и верифицированный подход к прогнозированию радиационного упрочнения на основе определения радиационно-индуцированных параметров структуры и с учетом взаимосвязи между ними, а также степени структурного совершенства преципитатов.
8. Разработанные прогнозные модели радиационного упрочнения сталей КР в зависимости от состава материала и условий облучения на основе использования сформированной «Базы данных параметров преципитатов» и методов машинного обучения.

Личный вклад автора

В диссертационной работе представлены результаты экспериментальных исследований сталей КР и ВКУ реакторов ВВЭР, полученные автором лично или при его участии в работах, выполненных под руководством д.т.н., проф. Б.А. Гуровича в рамках Государственного задания, НИР и НИОКР, а также в части АЗТ-исследований при выполнении научно-квалификационных работ сотрудниками ОРМиТ Курчатковского комплекса НБИКС-ПТ, проведенных под руководством д.т.н., проф. Е.А. Кулешовой.

Автором лично:

- разработана методология анализа и совместной интерпретации результатов АЗТ-исследований для облученных реакторных материалов и выполнен АЗТ-анализ сталей КР и ВКУ ВВЭР;

- сформирована репрезентативная «База данных параметров преципитатов» на основе собственных и литературных данных;
- обоснована общая концепция фазообразования и установлены закономерности образования преципитатов в сталях КР и ВКУ реакторов ВВЭР и PWR, а также их взаимосвязь с деградацией служебных характеристик материалов;
- разработан подход к прогнозированию радиационного упрочнения по структурным параметрам.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения, списка использованных источников из 472 наименований, одного приложения. Диссертация содержит 338 страниц, 125 рисунков, 14 таблиц.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы диссертации, сформулированы ее цель, задачи, научная новизна и практическая значимость, а также изложены основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе «Современное состояние вопроса. Деградация служебных характеристик материалов КР и ВКУ и их взаимосвязь с радиационно-индуцированным изменением фазового состава и структуры» выполнен анализ результатов отечественных и зарубежных исследований эволюции микроструктуры конструкционных материалов КР и ВКУ под действием нейтронного облучения.

Рассмотрены основные процессы радиационно-индуцированной деградации структуры и свойств конструкционных материалов, обусловленные генерацией и миграцией точечных дефектов (вакансий и межузельных атомов): образование дислокационных петель и вакансионных пор в результате кластеризации точечных дефектов, перераспределение примесных и легирующих элементов на различных типах стоков, а также радиационно-индуцированное фазообразование. Показано, что эти процессы определяются конкуренцией диффузионных потоков точечных дефектов и приводят к деградации свойств: радиационному упрочнению и радиационному охрупчиванию сталей КР, набуханию, повышению склонности к межкристаллитной коррозии и коррозионному растрескиванию под напряжением сталей ВКУ.

Особое внимание уделено фазообразованию, которое вносит значимый вклад в радиационное упрочнение – один из основных механизмов деградации служебных характеристик сталей КР и ВКУ. Типичные размеры образующихся преципитатов составляют 1,5–5 нм, а их плотность достигает 10^{22} – 10^{24} м⁻³, в связи с чем наиболее информативным инструментом для их количественного анализа является атомно-зондовая томография (АЗТ).

Рассмотрены современные подходы к моделированию радиационной повреждаемости конструкционных материалов и прогнозированию их поведения в условиях длительной эксплуатации, основанные на мультимасштабных методах. Переход от

микроструктуры к прогнозированию свойств обычно осуществляют путем учета микроструктурных параметров в моделях барьерного упрочнения. Однако основным вопросом при их использовании является неоднозначность коэффициентов прочности барьеров в моделях барьерного упрочнения, которые часто эмпирически подбираются для конкретного набора данных без достаточного физического обоснования.

Показано, что, несмотря на значительный объем исследований, единая экспериментально обоснованная картина радиационно-индуцированного фазообразования, включающая механизмы зарождения, кинетику роста, эволюцию состава и взаимосвязь с другими процессами деградации структуры для сталей различного класса, состава и условий облучения, до настоящего времени отсутствовала. Так, оставались нерешенными фундаментальные вопросы, имеющие как теоретическое, так и прикладное значение:

- общность механизмов зарождения и роста преципитатов в сталях КР и ВКУ;
- влияние химического состава и условий облучения (температуры, флюенса и флукса быстрых нейтронов) на параметры преципитатов и их барьерную прочность;
- корректность экстраполяции данных ускоренных испытаний на условия длительной эксплуатации;
- взаимосвязь фазообразования с другими механизмами радиационной деградации структуры и возможность физически обоснованного прогнозирования служебных характеристик на основе структурных параметров.

Решение этих задач требует накопления, обобщения, систематизации и анализа массивов экспериментальных результатов микроструктурных исследований. Достоверность как оценок служебных свойств по структурным параметрам, так и теоретических моделей может быть обеспечена только при верификации на массиве данных, полученных при нейтронном облучении в энергетических реакторах. Это обосновывает необходимость создания репрезентативной, методологически единообразной базы данных параметров преципитатов для широкого круга применяемых и разрабатываемых материалов КР и ВКУ различного состава после облучения в реальных условиях энергетических реакторов или приближенных к ним, включая повреждающие дозы, соответствующие 60–90 годам эксплуатации.

На этой основе сформулированы цели и задачи диссертационного исследования, направленного на системное решение указанных проблем путем разработки унифицированной методологии АЗТ-исследований, формирования репрезентативной Базы данных и выявления обобщенных закономерностей фазообразования в сталях КР и ВКУ, а также прогнозирования их служебных характеристик по структурным параметрам.

Во второй главе «Разработка методологии анализа и интерпретации результатов АЗТ-исследований применительно к облученным материалам» описаны

исследованные материалы – стали КР (малолегированные перлитные стали со структурой бейнита отпуска с О.Ц.К.-решеткой) и ВКУ (аустенитные коррозионно-стойкие стали с Г.Ц.К.-решеткой) легководных реакторов и изложена методология исследований. Основные разделы работы выполнены автором в рамках ряда различных НИР и НИОКР с АО «Концерн Росэнергоатом», ОКБ «ГИДРОПРЕСС», АО НПО «ЦНИИТ-МАШ», включая международные проекты в сотрудничестве с институтом старения МАИ (Франция), а также при выполнении государственного задания НИЦ «Курчатовский институт» (пункт 3п.2.1 «Исследование радиационной стойкости и ресурсных характеристик материалов корпусов действующих и перспективных реакторов типа ВВЭР»).

Задачи более глубокого понимания процессов фазообразования и их взаимосвязи с остальными процессами деградации структуры и свойств сталей КР и ВКУ потребовали выявления общих закономерностей для сталей разных классов в зависимости от состава и условий облучения. Основным методом исследования являлась АЗТ, изложение методологической основы которой представлено в отдельном разделе данной главы. Однако методологическая несопоставимость результатов, полученных разными лабораториями (из-за различий в алгоритмах обработки данных), приводила к существенному разбросу количественных оценок и препятствовала прямому сопоставлению данных и выявлению универсальных закономерностей.

Для решения этой проблемы, обусловленной субъективностью при реконструкции и обработке данных, была оптимизирована методика анализа и интерпретации результатов АЗТ-исследований применительно к реакторным материалам (сталям КР и ВКУ) [1,2]. Методика включает рекомендации по выбору параметров набора данных, их реконструкции, последующей обработке с использованием метода максимального разделения (как наиболее часто используемого в мировой практике) и последующей интерпретации результатов. Унифицированы выбор параметров поиска кластеров, определение численной плотности (с коррекцией на краевые кластеры), размера (через эквивалентный диаметр) и объемной доли (по отношению числа атомов в кластерах к общему числу атомов в образце), а также корректная интерпретация состава кластеров – по усредненному радиальному профилю концентрации в ядре кластера с исключением атомов железа для удобства сравнения результатов.

Методика прошла верификацию в международных раунд-робин экспериментах [3–5], что обеспечило воспроизводимость и сопоставимость оценок параметров преципитатов (плотность, размер, объемная доля и химический состав) между различными исследовательскими группами.

С использованием этой методики выполнены АЗТ-исследования более чем 400 образцов (90 состояний) сталей КР и ВКУ российского производства (ВВЭР) и систематизированы литературные данные (более 100 источников) по зарубежным аналогам (PWR), в результате чего выявлено влияние локального состава и флукса

быстрых нейтронов на параметры преципитатов, а также и зависимость размера преципитатов от их плотности при близких условиях облучения.

На основе выявленных закономерностей разработаны корректирующие подходы, позволяющие согласовать данные, полученные разными исследователями, и выявить общие закономерности изменения параметров преципитатов в зависимости от состава и условий облучения, заключающиеся в следующем [2]:

- оценка размера и объемной доли преципитатов через количество атомов в них или корректировка в соответствии с выявленными закономерностями для материалов близкого состава и облученных в сопоставимых условиях;
- оценка содержания преципитат-образующих элементов в исходной матрице путем использования фактически определенных концентраций элементов в АЗТ- образцах или корректировка общего состава материала в соответствии с выявленными зависимостями для Cu и Mn, которые входят в состав исходных фаз;
- приведение флюенса и флакса быстрых нейтронов к единицам с энергией $E > 1$ МэВ;
- разделение материалов по типу образующихся преципитатов (по составу), флаксу и температуре облучения.

Анализ литературных данных без корректировок позволяет проследить общие тенденции изменения параметров преципитатов от состава и условий облучения, но неудовлетворительно описывается аналитическими зависимостями (низкие значения коэффициента детерминации – R^2), тогда как применение указанного выше подхода позволяет существенно повысить достоверность выявляемых зависимостей (рисунок 1). Здесь и далее при обработке данных использована зависимость вида $y = A + C_F \cdot F^n$ (где F – флюенс быстрых нейтронов), соответствующего виду дозовой зависимости предела текучести.

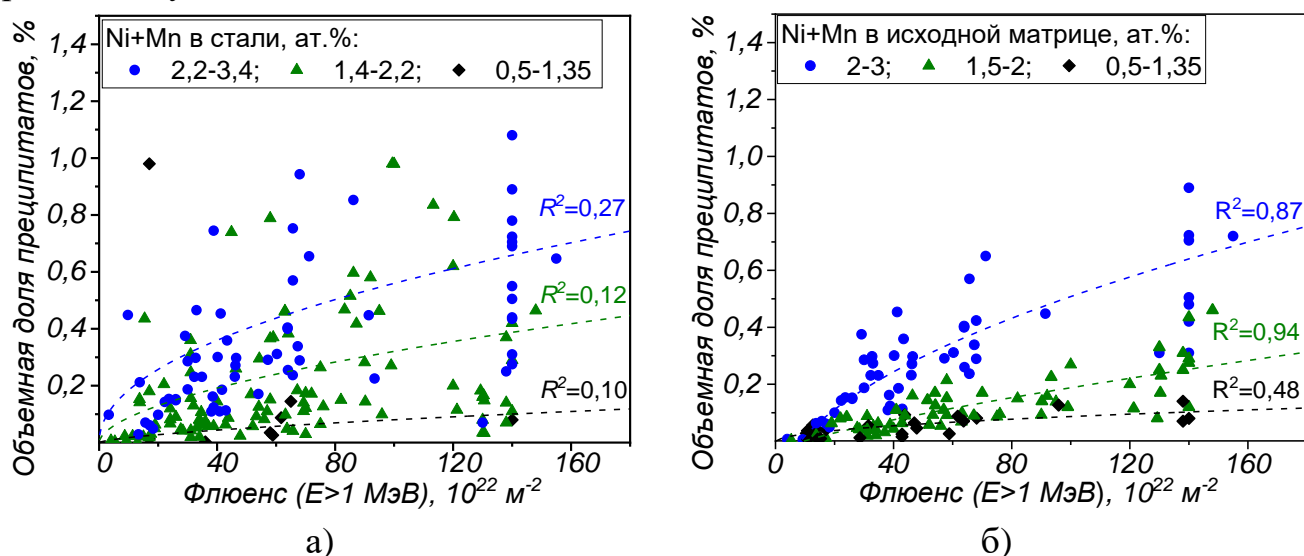


Рисунок 1 – Объемная доля преципитатов в сталях КР без (а) и с учетом (б) корректировок. Пунктирными линиями показана обработка данных зависимостями вида $A + C \cdot F^n$

Таким образом, разработана и верифицирована методология анализа и совместной интерпретации результатов АЗТ-исследований реакторных сталей, позволившая впервые сформировать репрезентативную Базу данных параметров преципитатов в сталях КР и ВКУ реакторов ВВЭР и РWR, облученных в энергетических и исследовательских реакторах до повреждающих доз, соответствующих 60–90 годам эксплуатации элементов, включая продленный срок службы. База данных включает 420 элементов (состояний материала), сформированных на основе 880 экспериментальных точек с учетом отдельных образцов:

- стали КР: Cu=0–0,5, P=0–0,09, Si=0–1,0, Ni=0–5,5, Mn=0–1,6, ат.%, флюенс $0,6 \cdot 10^{22} - 1,1 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-2}$ ($E > 1 \text{ МэВ}$), флакс $0,1 \cdot 10^{14} - 2,3 \cdot 10^{18} \text{ м}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$, температура облучения 50–400 °С;

- стали ВКУ: Cu=0–0,3, Ni=7,5–23, Si=1,0–2,0, Ti=0–0,8, Al=0–0,2, ат.%, повреждающая доза 0,05–145 сна, скорость набора дозы $4 \cdot 10^{-9} - 1 \cdot 10^{-6} \text{ сна/с}$, температура облучения 280–450 °С.

Каждый элемент Базы данных содержит: информацию о химическом составе (содержание основных преципитат-образующих элементов: Ni, Mn, Si, P и Cu в ат.%) и условиях облучения (температура, флюенс и флакс быстрых нейтронов), параметры преципитатов (численная плотность N_d , диаметр D , объемная доля f_v и состав), а также значения сдвига предела текучести под облучением по результатам механических испытаний. Сформированная База данных обеспечила необходимую достоверность и сопоставимость результатов, стала основой последующего анализа механизмов и закономерностей радиационного фазообразования в сталях КР и ВКУ легководных реакторов и позволила применить методы машинного обучения для прогнозирования служебных характеристик сталей КР.

В третьей главе «**Закономерности фазообразования и радиационной повреждаемости в применяемых и перспективных сталях КР в зависимости от их состава и условий эксплуатации**» представлен комплексный анализ фазообразования в сталях КР ВВЭР и РWR, основанный на авторских АЗТ-исследованиях [6–10] в сопоставлении с литературными данными. Это позволило установить, систематизировать и обосновать фундаментальные закономерности радиационно-индуцированного фазообразования и его влияния на служебные характеристики сталей КР широкого состава на различных стадиях эксплуатации, включая продленный срок службы, в том числе за счет восстановительного отжига.

В результате анализа сформулирована **физическая концепция радиационного фазообразования** в сталях корпусов легководных реакторов в зависимости от химического состава стали и условий облучения, включающая механизмы зарождения и роста преципитатов, кинетику фазообразования и взаимосвязь с другими процессами радиационной дегградации структуры, и обоснована с точки зрения силы стоков и конкуренции потоков точечных дефектов к ним.

Установлены физические закономерности и систематизированы механизмы радиационно-индуцированного фазообразования в сталях КР различного состава [1]. Показаны различия в механизмах и кинетике фазообразования в сталях КР с высоким содержанием меди ($> 0,06-0,07$ ат.%) и низким содержанием Ni ($< 0,4$ ат.%), к которым относятся стали КР ВВЭР-440, и с низким содержанием меди ($< 0,06$ ат. %), но более высоким содержанием Ni ($> 0,6-0,7$ ат.%), включая стали КР ВВЭР-1000/1200. В них образуются соответственно Cu-обогащенные и Ni-Si-Mn-обогащенные преципитаты (рисунок 2).

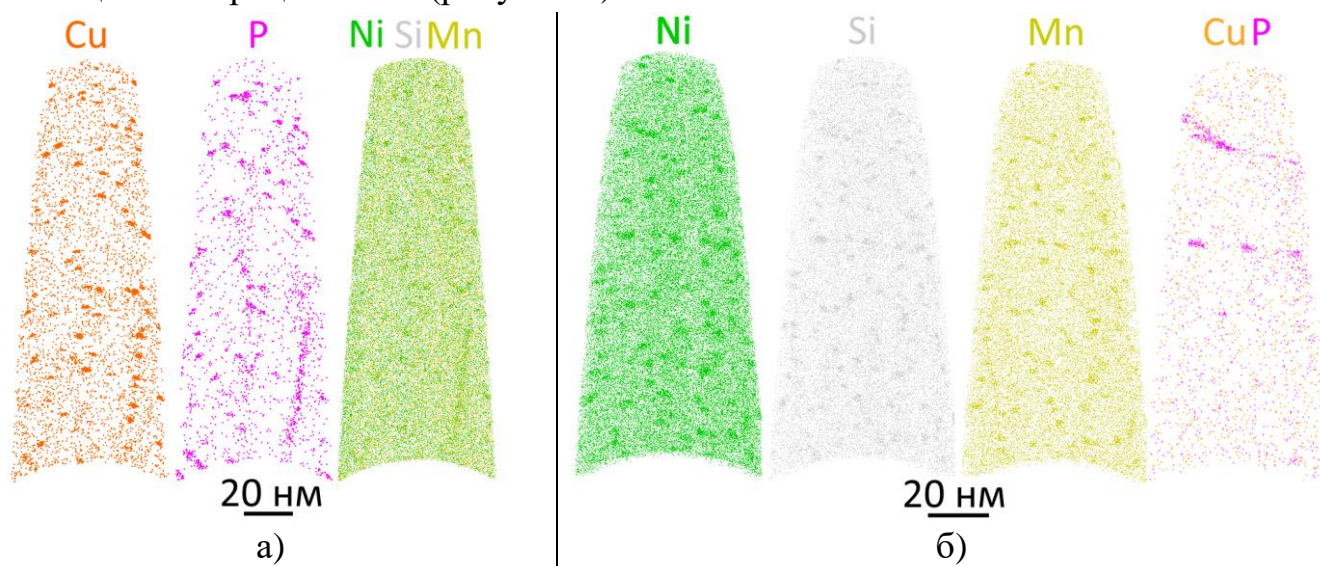


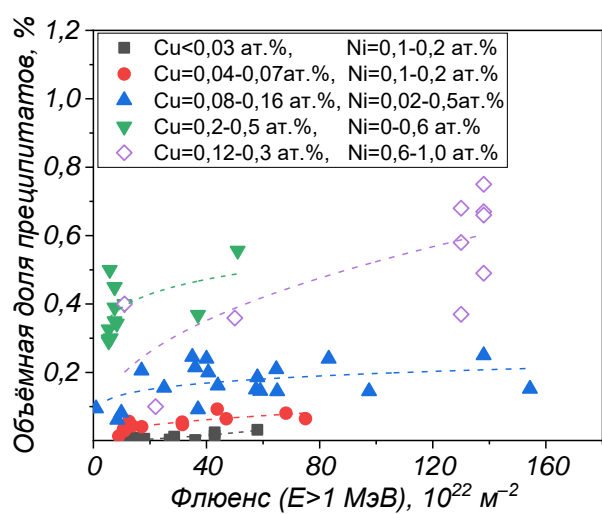
Рисунок 2 – АЗТ-карты распределения элементов (Cu, P, Ni, Si, Mn) в образцах сталей КР ВВЭР с высоким содержанием Cu и P, металл сварного шва (МШ) ВВЭР-440 (а) и с низким содержанием Cu и высоким содержанием Ni и Mn, МШ ВВЭР-1000/1200 (б)

Для **Cu-обогащенных** преципитатов характерны следующие особенности:

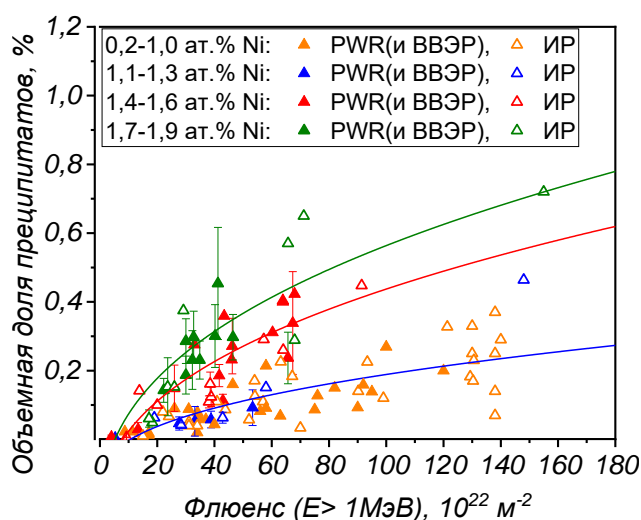
- радиационно-ускоренная природа вследствие пересыщения твердого раствора α -Fe медью, по мере исчерпания содержания которой под облучением все больший вклад начинают вносить радиационно-индуцированные процессы;
- преимущественными местами зарождения преципитатов являются Cu-вакансионные комплексы, образованные в каскадах;
- кинетика фазообразования имеет затухающий характер вследствие исчерпания матричного содержания меди до значений $0,02-0,03$ ат.% (рисунок 3 (а)): плотность и объемная доля Cu-обогащенных преципитатов растут уже при малых значениях флюенсов, определяются концентрацией меди в стали, и быстро выходят на насыщение при флюенсах $(20-30) \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$ ($E > 1 \text{ МэВ}$), что соответствует $\sim 10-15$ годам эксплуатации;
- в присутствии фосфора в стали образуются Cu-P-обогащенные преципитаты, плотность которых увеличивается с увеличением содержания фосфора в стали.

В отличие от Cu-обогащенных преципитатов, для **Ni-Si-Mn-обогащенных** преципитатов (при температурах $\sim 300^\circ\text{C}$) характерны:

- преимущественно радиационно-индуцированная природа вследствие радиационно-индуцированной сегрегации на сформировавшихся в результате облучения комплексах межузельных точечных дефектов;
- наличие инкубационного периода образования преципитатов и монотонный рост их плотности до $\sim 10^{24} \text{ м}^{-3}$ (в зависимости от флюенса и состава стали) без значимого изменения состава матрицы и без насыщения в диапазоне флюенсов, соответствующих 60–90 годам эксплуатации (рисунок 3 (б));
- снижение темпа накопления преципитатов по мере облучения, однако процессы их образования не прекращаются при флюенсах, далеко за пределами характерных ресурсных значений при эксплуатации КР;
- увеличение плотности и объемной доли преципитатов с увеличением содержания Ni и Mn в стали.



а)



б)

Рисунок 3 – Объемная доля преципитатов в сталях КР с высоким (а) и низким (б) содержанием меди. Пунктирными линиями показана обработка данных зависимостями вида $y = A + C_F \cdot F^n$

При низком содержании меди в матрице образование отдельных Cu-обогащенных преципитатов становится невозможным, однако атомы меди по-прежнему способствуют образованию преципитатов (уже на основе Ni–Si–Mn), облегчая формирование зародышей. При этом на дислокационных петлях наблюдается сегрегация элементов Si, Ni и Mn близкого преципитатам состава, что указывает на определяющий вклад радиационно-индуцированной сегрегации в их образование (см. рисунок 4).

В случае сталей КР с высоким содержанием Cu ($> \sim 0,06$ ат.%) и Ni ($> 0,6$ ат.%) на первых стадиях облучения происходит образование Cu-обогащенных преципитатов, а по мере исчерпания содержания меди в матрице – образование Ni–Si–Mn-обогащенных преципитатов.

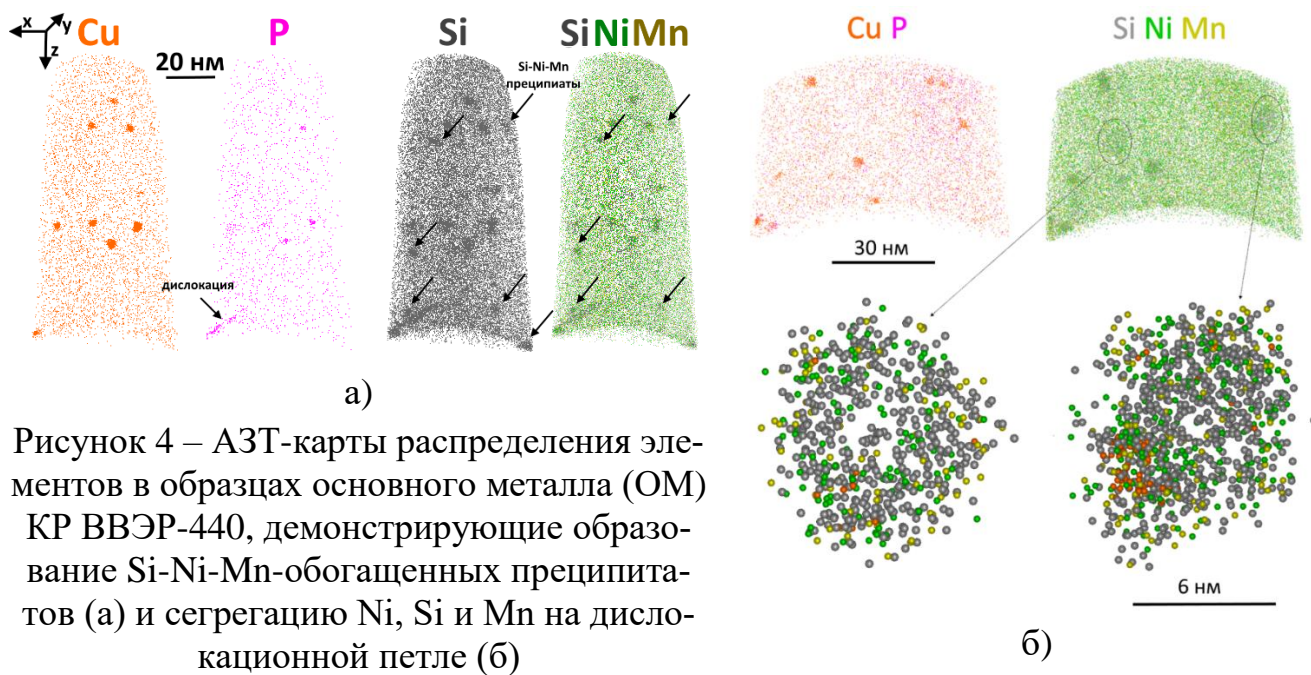


Рисунок 4 – АЗТ-карты распределения элементов в образцах основного металла (ОМ) КР ВВЭР-440, демонстрирующие образование Si-Ni-Mn-обогащенных преципитатов (а) и сегрегацию Ni, Si и Mn на дислокационной петле (б)

Таким образом, продемонстрирован **определяющий вклад преципитатов** в изменение свойств сталей КР с повышенным содержанием Ni во всем интервале эксплуатации, тогда как для сталей КР с высоким содержанием меди и низким содержанием Ni вклад преципитатов в изменение свойств не изменяется после 10–15 лет эксплуатации.

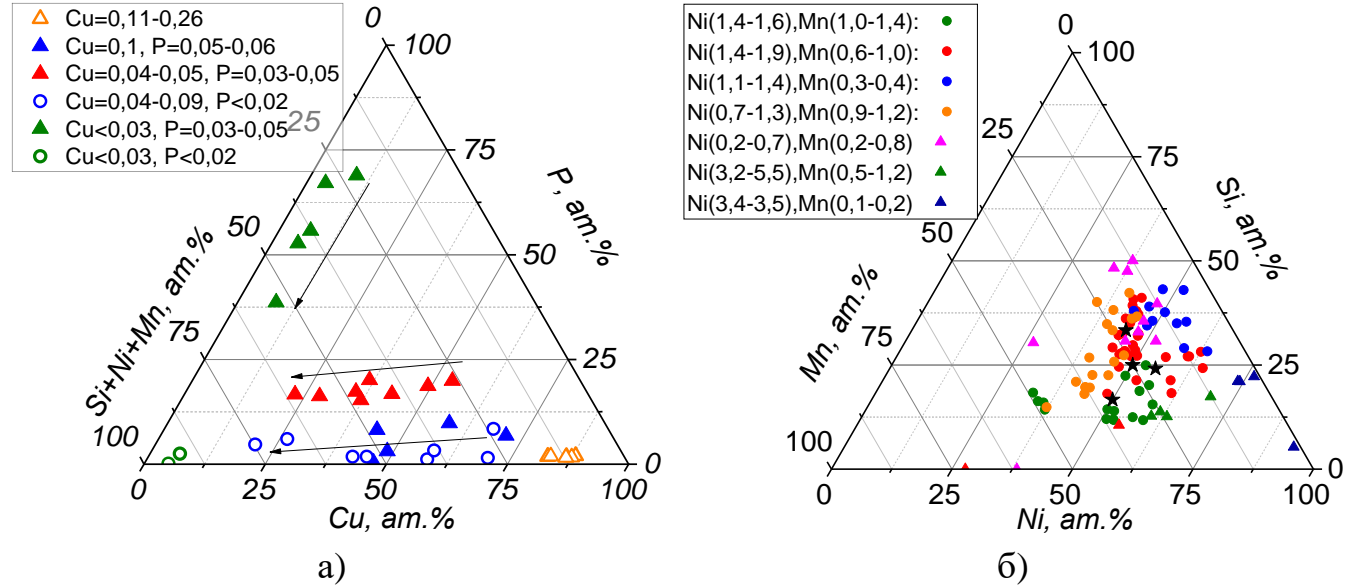


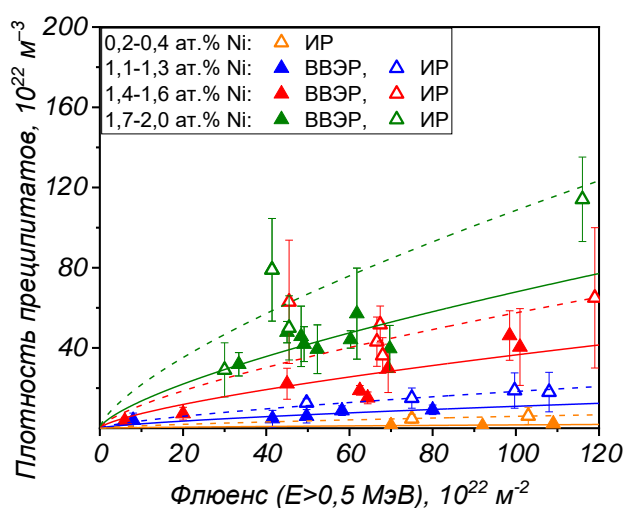
Рисунок 5 – Составы преципитатов (без учета Fe) в сталях КР с высоким содержанием меди и низким содержанием никеля (а) и низким содержанием меди и различным содержанием Ni и Mn (б). Стрелками показано увеличение флюенса. Указано содержание элементов в матрице к началу облучения в ат.%

На основании анализа результатов АЗТ-исследований, включающих эксперименты по отжигам, теоретических представлений и результатов моделирования в сопоставлении с результатами механических испытаний обосновано, что при облучении в условиях, характерных для эксплуатации КР (при температурах ~300°C до доз

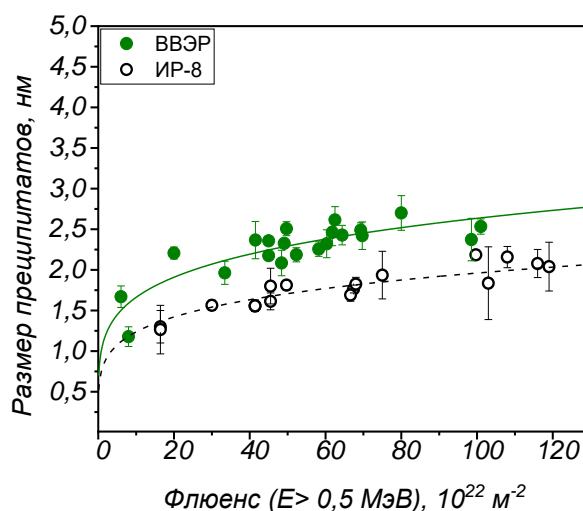
в пределах 0,1–0,2 сна), образующиеся преципитаты (кластеры растворенных атомов и точечных дефектов) **являются предвыделениями**, по химическому составу близкими, но не достигающими стехиометрического состава G/G₂-фазы.

Состав преципитатов определяется содержанием преципитат-образующих элементов в стали (рисунок 5). Выделения стехиометрического состава (G/G₂ – фазы) могут образоваться при увеличении дозы и/или температуры облучения и/или концентрации преципитат образующих элементов в стали, т.е. при увеличении термодинамического стимула их образования.

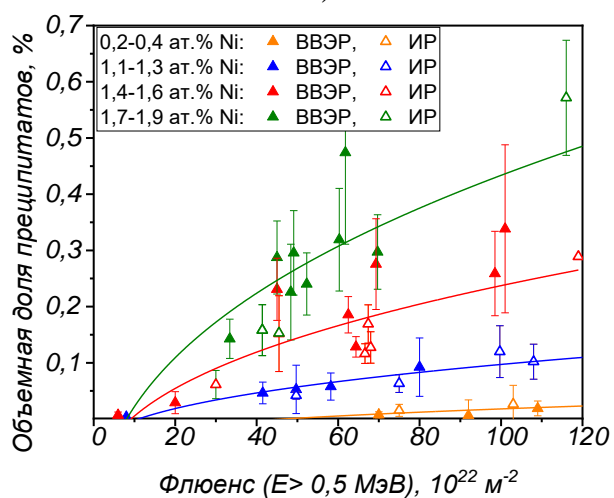
Экспериментально выявлено влияние условий облучения на параметры преципитатов [2,7,10]. Показано, что повышение **фракса** приводит к **увеличению численной плотности преципитатов и снижению их размера** (рисунок 6), что связано с увеличением количества мест для зарождения преципитатов и обосновано с точки зрения силы стоков (эффективности поглощения стоками точечных дефектов). При этом эффект тем значимее, чем выше абсолютное значение плотности преципитатов, т.е. чем больше содержание Ni и Mn в стали.



а)



б)



в)

Рисунок 6 – Влияние фракса на параметры Ni–Si–Mn-обогащенных преципитатов в сталях КР: плотность (а), размер (б) и объемную долю (в) Линиями обозначены результаты обработки данных зависимостью вида $y=C_F \cdot F^n$: сплошными – относящиеся к облучению в энергетических реакторах, а пунктирными – к ускоренному облучению в исследовательских реакторах

Обобщение с литературными данными (в широком диапазоне составов Ni=0,19–2,48, Mn=0,21–1,64, Si=0,19–1,06, ат.%) подтвердило закономерности, обнаруженные при анализе результатов собственных АЗТ-исследований сталей КР ВВЭР. При этом для собственных результатов, полученных с использованием верифицированной методики для материалов близкого состава, коэффициент детерминации R^2 выше по сравнению с результатами анализа интегральной базы данных для сталей КР с широкими интервалами легирования и условий облучения.

Показано, что при умеренных изменениях флюкса (в интервале значений 10^{14} – 10^{18} $\text{м}^{-2}\text{с}^{-1}$, характерных для энергетических и исследовательских реакторов) значения объемной доли Ni–Si–Mn-обогащенных преципитатов значимо не отличаются (рисунок 7), поскольку эффекты увеличения плотности преципитатов компенсируются уменьшением их размера [10]. В результате, в рамках модели барьерного упрочнения результирующее сопротивление скольжению дислокаций одинаково, если образуются преципитаты меньшего размера с высокой плотностью (в случае высокого флюкса и небольшой термической составляющей при ускоренном облучении) или более крупные преципитаты с меньшей плотностью (в случае низкого флюкса и большей термической составляющей при облучении в процессе эксплуатации), что представлено на рисунке 7 (б). Полученные результаты находятся в хорошем соответствии с литературными данными: значимой разницы в изменении предела текучести при изменении флюкса не обнаруживается.

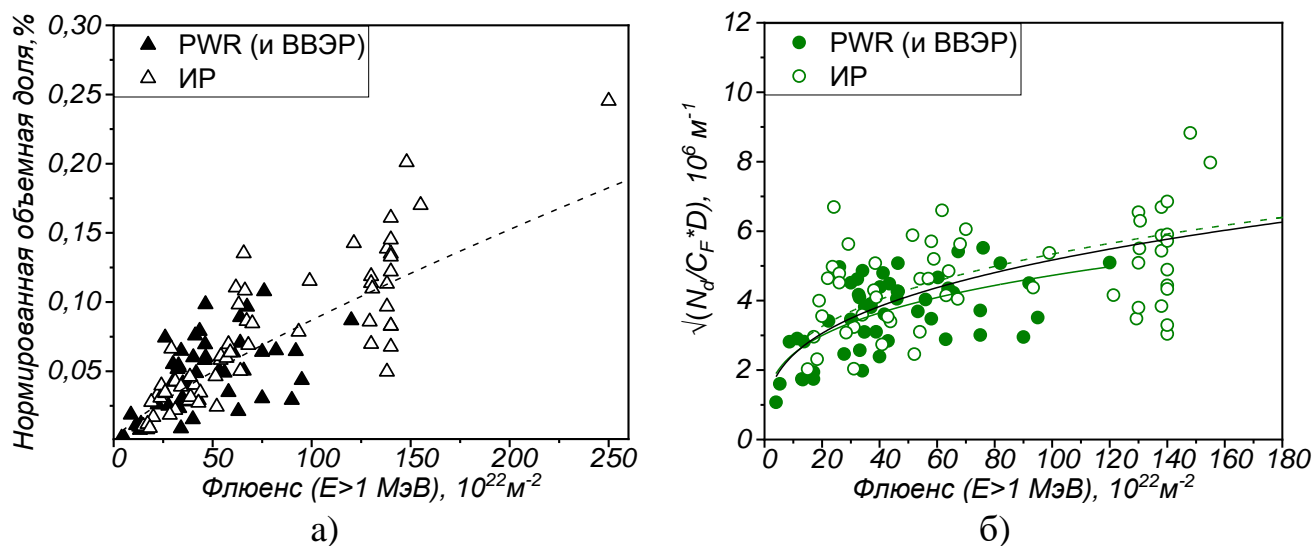


Рисунок 7 – Нормированные значения объемной доли преципитатов $C_F = \text{Ni}^2 + \text{Mn}^2 + \text{Ni} \cdot \text{Mn}$ в сталях КР на концентрацию преципитат-образующих элементов в матрице (а) и $\sqrt{(N_d \cdot d)}$ (б)

Таким образом, **физически обоснована возможность корректного прогноза радиационного упрочнения** (обусловленного преимущественно образованием преципитатов) при экстраполяции данных ускоренных облучений на реальные условия

длительной эксплуатации КР. Однако отмечено, что при экстремально высоких флаксах (при имитационном ионном облучении) может наблюдаться снижение объемной доли преципитатов, что может привести к недооценке упрочняющего вклада преципитатов в эксплуатационных условиях.

Показано, что повышение температуры облучения (в интервале 220–400°C) усиливает термическую составляющую фазообразования (рисунок 8): снижается плотность преципитатов (из-за усиления рекомбинации точечных дефектов), увеличивается их размер, а состав приближается к составам равновесных G/G₂-фаз, что повторяет закономерности, обнаруживаемые при уменьшении флакса [1,10]. Таким образом, повышение температуры облучения с точки зрения кинетики фазообразования качественно действует как снижение флакса.

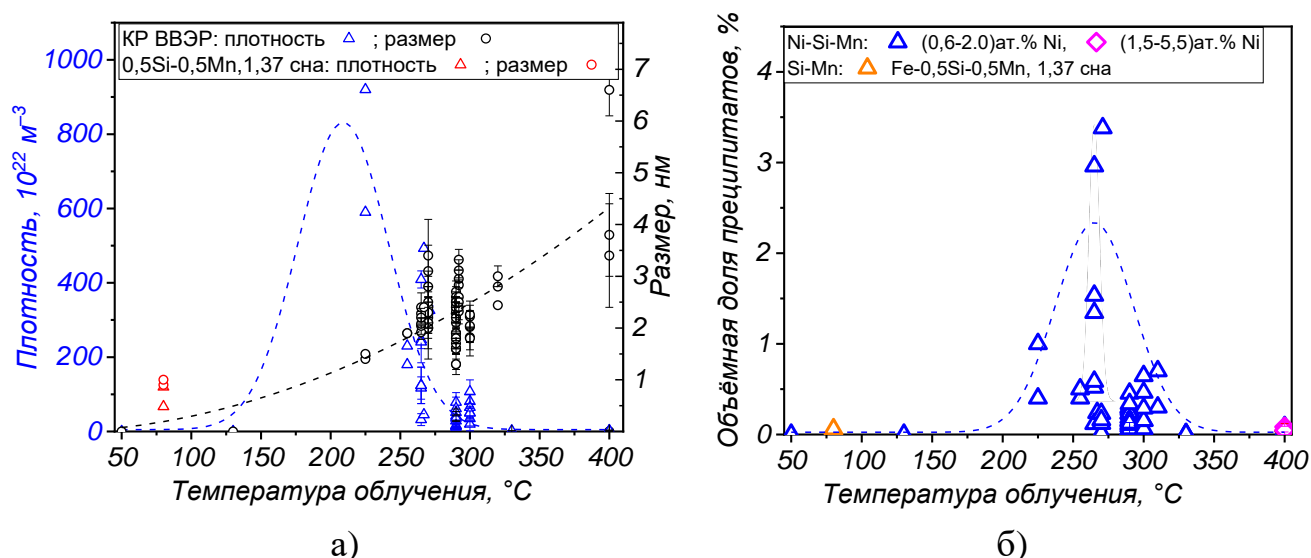


Рисунок 8 – Температурные зависимости плотности и размера (а) и объемной доли (б) Ni–Si–Mn-обогащенных преципитатов в сталях КР

Экспериментально наблюдаемые закономерности фазообразования в зависимости от исходной структуры, химического состава стали и условий облучения объяснены с точки зрения силы стоков и потоков точечных дефектов к ним. Показано, что:

- увеличение исходной плотности мелких карбидных/карбонитридных фаз (с 10^{21} м^{-3} до 10^{23} м^{-3}), которые, наряду с дислокациями, обладают наибольшей силой стоков в сталях КР в исходном состоянии, может способствовать значимому снижению уровня радиационной повреждаемости.

- дислокации и границы зерен являются преференциальными стоками до тех пор, пока их сила стока не станет ниже, чем сила стоков кластеров в матрице, в связи с чем зарождение преципитатов на начальных стадиях облучения происходит на дислокациях (плотность преципитатов на дислокациях составляет $\sim 2\text{--}4 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$ и не увеличивается с ростом флюенса), и этот механизм значим для сталей с низким содержанием преципитат-образующих элементов (Ni 0,3–1,3% мас. %) и/или при низких значениях флюенса (до $20 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$).

- рост суммарной силы стоков в процессе облучения (за счет роста плотности преципитатов и петель) снижает потоки точечных дефектов к ним, что приводит к постепенному замедлению темпа образования преципитатов, а также к меньшим размерам преципитатов при более высокой их плотности;

- увеличение флакса сопровождается увеличением концентрации точечных дефектов и их комплексов, что приводит к увеличению плотности преципитатов при снижении их размера.

Проанализирована взаимосвязь процессов радиационно-индуцированной деградации структуры сталей КР в процессе длительной эксплуатации и показано, что, в целом, закономерности эволюции дислокационных петель и зернограничной сегрегации повторяют выявленные закономерности фазообразования в зависимости от условий облучения, что обусловлено едиными механизмами их образования – кластеризацией и миграцией точечных дефектов. При этом наблюдается конкуренция между этими процессами, связанная с конкуренцией потоков точечных дефектов к различным стокам. Так, показано, что:

- конкуренция процессов образования и роста дислокационных петель и преципитатов объясняет обратную корреляцию их плотностей (при близких условиях облучения) и определяется содержанием преципитат-образующих элементов в матрице стали;

- сегрегация элементов Ni, Mn, Si и P на границах зерен подавляет образование преципитатов на основе этих элементов в приграничных зонах;

- при ускоренном облучении фосфор преимущественно сегрегирует на кластерах в матрице, поскольку короткие диффузионные пути при большом количестве стоков точечных дефектов в теле зерна ограничивают его миграцию к границам зерен. При низком флаксе увеличиваются пути диффузии, что способствует значимой сегрегации P на границах зерен. Это согласуется с обнаруженной более высокой концентрацией фосфора в преципитатах и меньшим уровнем его сегрегации на границах зерен при ускоренном облучении.

Это подтверждает, что **применение ускоренных реакторных испытаний** для прогнозирования радиационного охрупчивания сталей КР приводит к **недооценке вклада зернограничной сегрегации** в радиационное охрупчивание для материалов, склонных к зернограничному охрупчиванию (например, для сталей КР ВВЭР-1000 с повышенным содержанием Ni и Mn) [11,12].

В условиях длительной эксплуатации вплоть до флюенсов $\sim 1 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-2}$ исходные карбиды значимо не изменяются, зернограничная сегрегация стремится к насыщению (к равновесной), а плотность петель не превышает значений $1 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$, в связи с чем преципитаты становятся основными структурными элементами, ответственными за радиационное упрочнение и охрупчивание сталей КР (с высоким содержанием преципитат-образующих элементов) [13].

Таким образом, системно описана эволюция микроструктуры сталей КР под облучением, которая регулируется балансом силы стоков и потоков точечных дефектов и растворенных атомов к ним.

Кроме того, рассмотрено влияние отжигов при температурах (350–565°C) различной продолжительности на поведение Cu-обогащенных и Ni–Si–Mn-обогащенных преципитатов, образовавшихся при предшествующем облучении, а также исследованы и уточнены механизмы и кинетика **фазообразования** в сталях КР с высоким содержанием меди и низким содержанием никеля (ВВЭР-440) и с низким содержанием меди и повышенным содержанием никеля (КР ВВЭР-1000) в циклах «**облучение-отжиг**» [8,14,15]. Продемонстрированы принципиальные отличия в кинетике фазаобразования в сталях КР ВВЭР-1000 по сравнению со сталями КР ВВЭР-440 в циклах «облучение-отжиг» (см. рисунок 9). Для сталей КР ВВЭР-1000 полное растворение Ni–Si–Mn-обогащенных преципитатов не приводит к изменению состава матрицы, тогда как в сталях КР ВВЭР-440 неполное растворение Cu/Cu-P-обогащенных преципитатов с образованием остаточных медных фаз при отжиге приводит к изменению состава матрицы (к исчерпанию матричного содержания меди до значений 0,02–0,03 ат. %). Это обуславливает изменение кинетики фазаобразования в сталях КР ВВЭР-440 в циклах «облучение-отжиг»: снижается темп накопления преципитатов другого состава (концентрация меди в преципитатах снижается, а обогащение Ni, Si и Mn растет), а механизм их образования меняется с радиационно-ускоренного на радиационно-индуцированный. Для сталей КР ВВЭР-1000 кинетика фазаобразования в сталях при первичном и повторном облучениях остается идентичной.

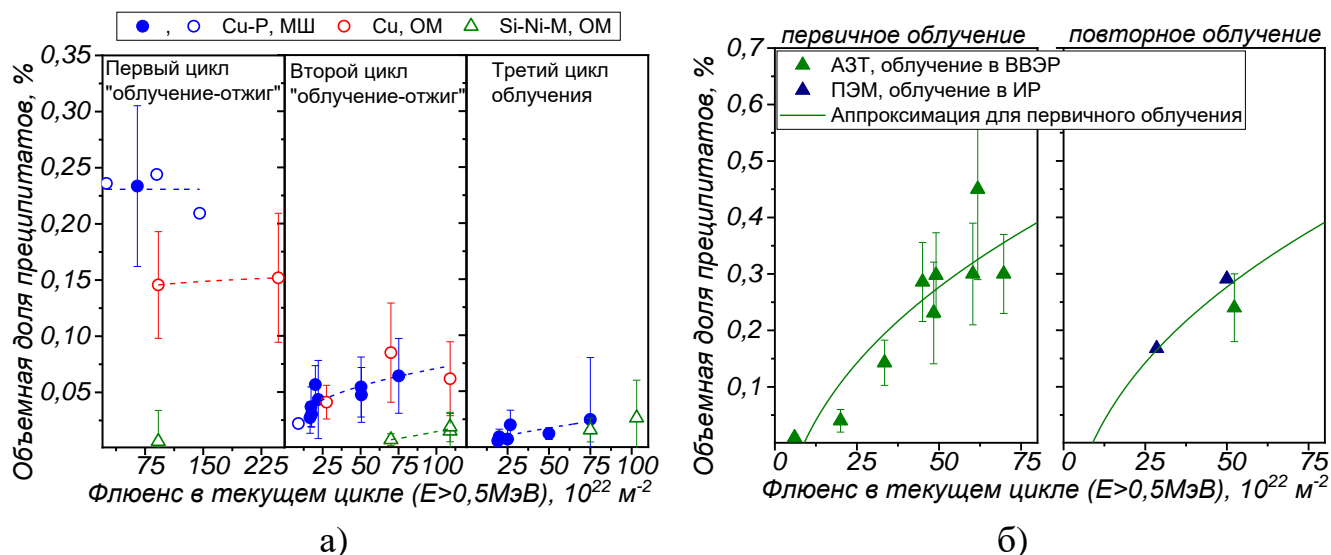


Рисунок 9 – Зависимость объемной доли радиационно-индуцированных преципитатов в циклах «облучение-отжиг» в сталях с соответственно высоким и низким содержанием меди в исходной матрице: ВВЭР-440 (а) и ВВЭР-1000 (б)

На основе сформированной Базы данных параметров преципитатов и выявленных закономерностей эволюции микроструктуры сталей КР в процессе эксплуатации

разработана методология прогнозирования радиационного упрочнения сталей КР на основе структурных параметров. Методология включает физически обоснованный подход к выбору коэффициентов барьерной прочности структурных элементов в модели барьерного упрочнения, а также модель машинного обучения для предсказания параметров преципитатов [16].

С учетом выявленной конкуренции процессов образования преципитатов и петель обосновано, что:

- Для сталей с низкой концентрацией преципитат-образующих элементов и, соответственно, низкой плотностью преципитатов на их основе, для которых дислокационные петли будут вносить значимый вклад в общее радиационное упрочнение, при прогнозировании радиационного упрочнения необходим учет вклада дислокационных петель в явном виде по данным просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). К таким материалам относятся стали КР ВВЭР-440 начиная со второго цикла облучения.

- Для сталей с высокой концентрацией преципитат-образующих элементов вследствие существенно более высокой плотности преципитатов характерен преобладающий вклад преципитатов в радиационное упрочнение. К таким сталям относятся стали КР ВВЭР-1000/1200. В характерных для эксплуатации интервалах флюенсов дислокационные петли (с характерными размерами 1–4 нм) при АЗТ-исследованиях практически неотличимы от преципитатов, поэтому результаты АЗТ-исследований фактически дают суммарную плотность преципитатов и петель. В этом случае вклад петель может быть учтен косвенно путем параметризации коэффициентов барьерной прочности преципитатов при сопоставлении с результатами механических испытаний.

Следует отметить, что отдельный учет вкладов радиационно-индуцированных преципитатов и дислокационных петель в радиационное упрочнение сталей КР является физически предпочтительным, тогда как предложенный подход является обоснованным инженерным приближением. Однако в условиях недостатка экспериментальных данных о параметрах дислокационных петель в сталях КР широкого состава в литературе, а также с учетом сложности и неоднозначности их экспериментального определения методами просвечивающей электронной микроскопии (дефектов типа black dots с неразрешаемой линией нулевого контраста), данный подход позволяет выполнить расчетно-экспериментальную оценку радиационного упрочнения с достаточной степенью достоверности. В дальнейшем, при накоплении экспериментальной данных о дислокационных петлях в сталях КР широкого состава или получении результатов моделирования из первых принципов, вклад петель может быть учтен в явном виде для всех сталей.

Для сталей с низким содержанием меди (<0,06 ат.%) и высоким содержанием никеля (>0,6 ат.%) предложен физически обоснованный подход к выбору коэффициента барьерной прочности преципитатов в модели барьерного упрочнения в зависимости от степени их структурного совершенства – степени приближения преципитатов к равновесным фазам по мере облучения [16].

Как наиболее физически интерпретируемая, для оценки упрочнения по структурным параметрам выбрана модель барьерного упрочнения, усовершенствованная Monnet¹, в которой коэффициент прочности барьера зависит от его размера:

$$\Delta\sigma_{0,2} = M\alpha_{sc}Gb\sqrt{N_{sc}d_{sc}} = M\frac{\Omega_{sc}}{\Omega_{\infty}}^{3/2}\left(\frac{\ln(\bar{D}/b)}{\ln(l/b)}\right)^{3/2}\frac{\ln(l/b)}{2\pi}Gb\sqrt{Nd}, \quad (1)$$

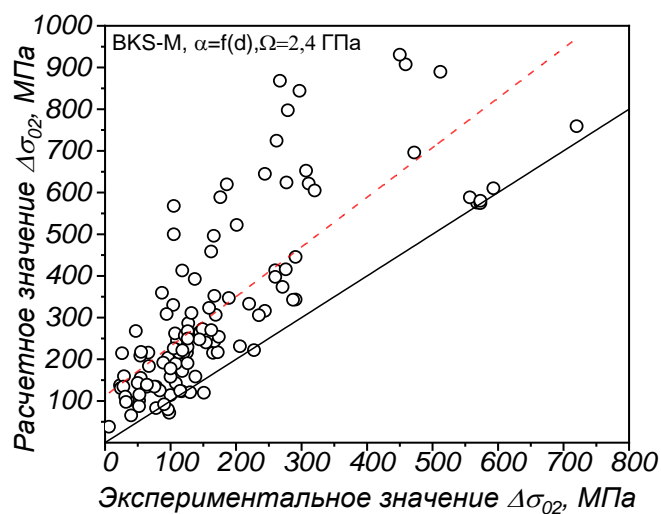
где M – фактор Тейлора, b – вектор Бюргерса, $l = \frac{1}{\sqrt{dN}}$ – d – свободное расстояние между преципитатами, $\bar{D} = \frac{ld}{(l+d)}$ эффективный диаметр барьера, d – диаметр преципитата. Здесь фактор $\frac{\Omega_{sc}}{\Omega_{\infty}}$ учитывает прочность барьера (Ω_{sc} – сопротивлению сдвигу преципитата при взаимодействии с дислокацией, а Ω_{∞} – сопротивление сдвигу абсолютно непорезанного преципитата). Тогда коэффициент барьерной прочности преципитата можно представить в виде $\alpha_{sc} = \left(\frac{\Omega_{sc}}{\Omega_{\infty}}\frac{\ln(2\bar{D}/b)}{\ln(l/b)}\right)^{3/2}\frac{\ln(l/b)}{2\pi}$.

При этом в литературе для сталей КР значение параметра Ω_{sc} принято равным 2,4 ГПа, что было получено по результатам моделирования для выделений, имеющих собственную решетку типа В2¹. Поскольку, как было обосновано в данной работе, в реальных условиях эксплуатации преципитаты в сталях КР являются предвыделениями, значение Ω_{sc} для них должно быть ниже. Это подтверждается неудовлетворительным соответствием расчетно-экспериментальных значений радиационного упрочнения с экспериментально определенными сдвигами предела текучести с использованием $\Omega_{sc}=2,4$ ГПа для всей сформированной Базы данных (рисунок 10 (а)).

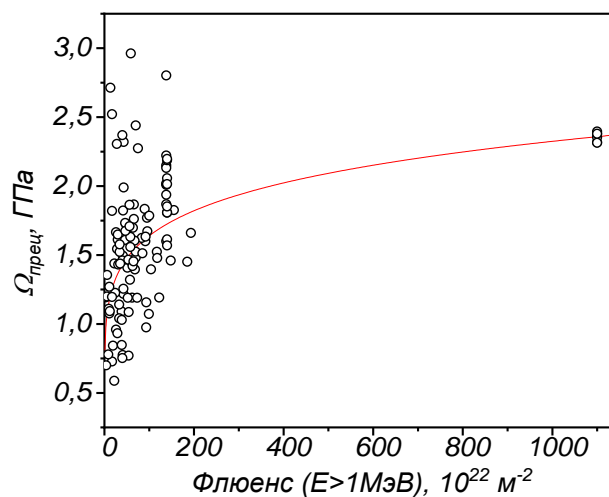
Прочность барьеров меняется в зависимости от состава преципитатов и/или того, являются ли они выделениями или предвыделениями, т.е. от степени структурного совершенства преципитатов. В рамках предложенной концепции фазообразования это означает, что по мере роста преципитатов (предвыделений, которыми являются обнаруживаемые кластеры в сталях КР в характерных для РWR и ВВЭР условиях облучения до доз в пределах 0,2 сна) и, соответственно, по мере перехода от предвыделений к выделениям, значение сопротивления сдвигу преципитатов при взаимодействии с дислокациями увеличивается и приближается к величине, характерной для

¹ Monnet G. Multiscale modeling of irradiation hardening: Application to important nuclear materials // J. Nucl. Mater. – 2018 – Vol. 508. – P. 609-627

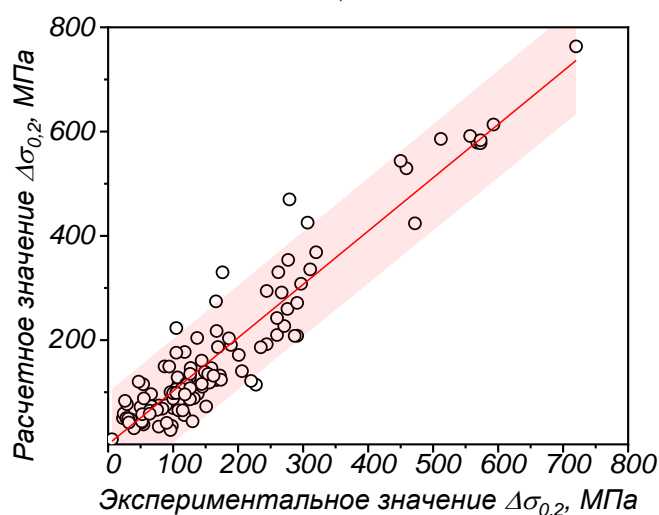
выделений ($\Omega_{sc}=2,4$ ГПа). Поскольку размер precipитатов увеличивается с дозой облучения, предложена степенная дозовая зависимость Ω_{sc} с выходом на насыщение (рисунок 10 (б)). Параметр Ω_{sc} подбирался таким образом, чтобы обеспечить наилучшее соответствие экспериментальным данным (рисунок 10 (в)).



а)



б)



в)

Рисунок 10 – Сопоставление расчетно-экспериментальных значений радиационного упрочнения и экспериментальных значений сдвига предела текучести для сталей КР с использованием постоянного коэффициента $\Omega_{sc} = 2,4$ ГПа (а) и $\Omega_{sc} = f(F)$ (в), а также дозовая зависимость $\Omega_{sc} = f(F)$ (б)

Предложенный подход к прогнозированию радиационного упрочнения был верифицирован для сталей КР ВВЭР-1000 (рисунок 11), а также для сталей КР ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 в циклах «облучение-отжиг» (рисунок 12). Расчетно-экспериментальная оценка по параметрам precipитатов, определенных методом АЗТ, демонстрирует хорошее соответствие с результатами механических испытаний, при этом дает более закономерную дозовую зависимость радиационного упрочнения. Для результатов механических испытаний характерен значительный разброс, обусловленный неоднородностями химического состава и термической обработки образцов, вырезанных из разных слоев толстостенных заготовок. При увеличении статистики закономерности изменения предела текучести выявляются и по результатам механических испытаний.

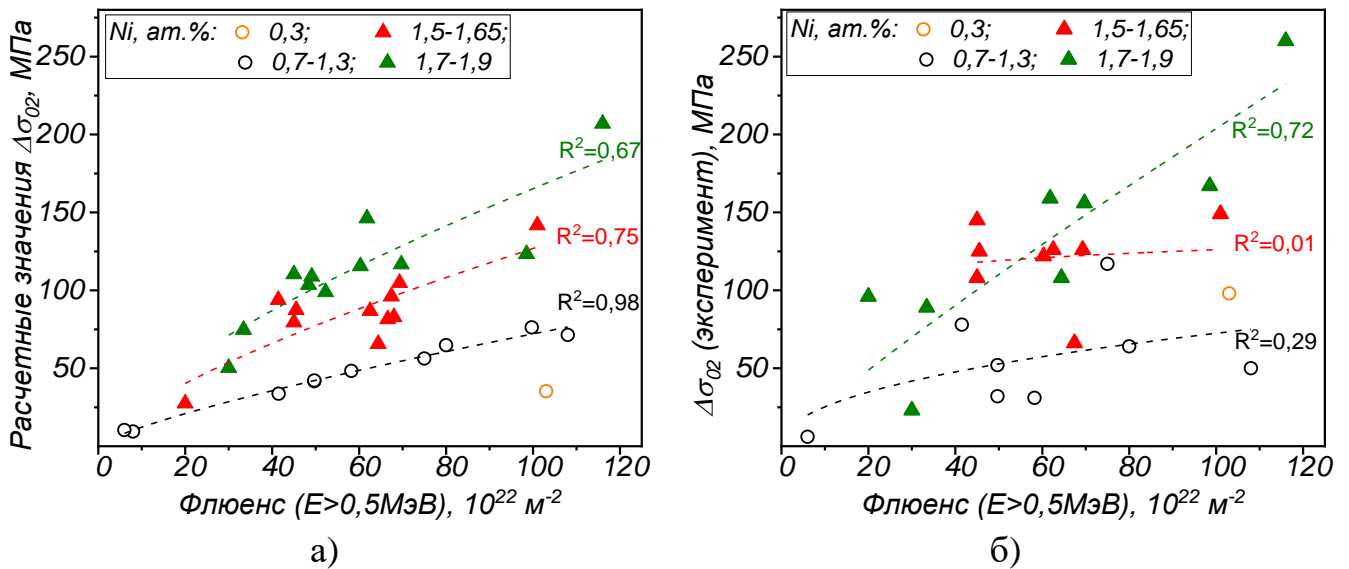


Рисунок 11 – Радиационное упрочнение сталей КР ВВЭР-1000: расчетно-экспериментальная оценка (а) и экспериментальные значения (б)

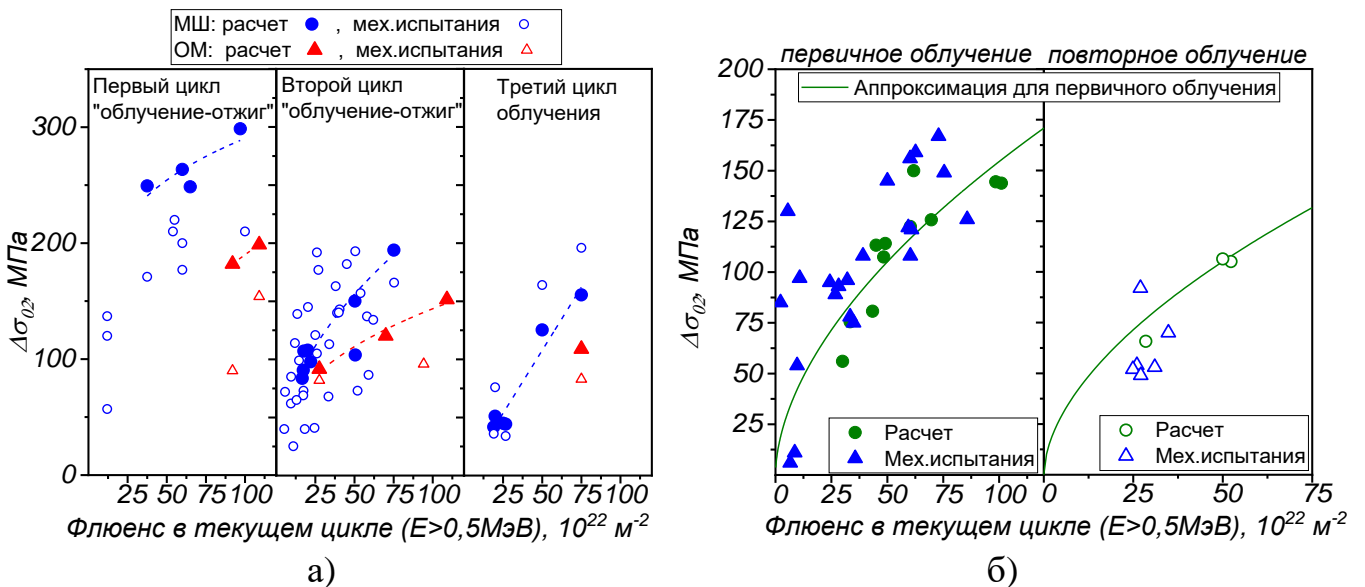


Рисунок 12 – Расчетно-экспериментальной оценки радиационного упрочнения сталей КР в циклах «облучение-отжиг» в сопоставлении с результатами механических испытаний КР ВВЭР-440 (а) МШ КР ВВЭР-1000 (б)

Таким образом, **разработан и верифицирован физически обоснованный подход к прогнозированию радиационного упрочнения**, основанный на выявленных закономерностях: степени структурного совершенства преципитатов (от предвыделений к фазам) и конкуренции процессов образования дислокационных петель и преципитатов. Расчетно-экспериментальные оценки радиационного упрочнения по структурным параметрам при таком подходе к выбору коэффициентов барьерного упрочнения показывают наилучшее соответствие с результатами механических испытаний.

На основе сформированной Базы данных с учетом выявленных закономерностей фазообразования впервые разработана предиктивная модель с использованием методов машинного обучения², позволяющая с высокой достоверностью прогнозировать параметры преципитатов (плотность, объемную долю и размер) в зависимости от состава и условий облучения [16]. При этом набор данных составил 757 точек с учетом данных по отдельным образцам.

Модель обучена для значений плотности и объемной доли преципитатов, а размер из числа целевых переменных был исключен из-за явной связи с объемной долей и из-за описанной ранее неопределенности при оценке размера преципитатов методом АЗТ. Содержание фосфора для большинства элементов Базы данных низкое, а концентрация кремния меняется в узких пределах, что не позволяет выявить их влияние на целевые переменные. В результате отбора в качестве исходного набора признаков для обучения выбраны: содержание Ni, Mn и Cu в исходной матрице стали (в ат.%), температура облучения, флакс и флюенс быстрых нейтронов ($E > 1$ МэВ). Для устойчивости обучения из набора данных были исключены явные выбросы в признаках и в целевых переменных, после чего объем набора данных сократился до 725 элементов.

Разработанная модель представляет собой гибридную модель регрессии, сочетающую параметрический и непараметрический подходы с архитектурой на основе моделей деревьев решений M5 и Cubist, сочетающих линейную регрессию и регрессионные деревья. В данной работе модель M5/Cubist была модифицирована путем обучения в узлах дерева нелинейных моделей вида (с учетом выявленных закономерностей влияния флюенса, флакса, температуры и химического состава на параметры преципитатов):

$$y = b_{00} + (b_0 + b_1Ni + b_2Mn + b_3Cu + b_{12}NiMn + b_{13}NiCu + b_{23}MnCu)F^\alpha \varphi^\gamma e^{\frac{-(T-\delta)^2}{2\sigma^2}}, \quad (2)$$

где Cu , Ni , Mn – концентрации элементов в ат.% в матрице к началу облучения, F и φ – флюенс и флакс быстрых нейтронов ($E > 1$ МэВ), T – температура облучения.

Модель обеспечивает физически обоснованное прогнозирование радиационного упрочнения сталей КР в широком диапазоне составов при различных условиях облучения. Сопоставление прогнозных и истинных значений параметров преципитатов (на примере плотности) представлено на рисунке 13. Значения коэффициента детерминации R^2 при этом составляют 0,80 для объемной доли преципитатов и 0,76 для плотности преципитатов.

² Разработка моделей машинного обучения для прогнозирования параметров преципитатов выполнена совместно с Малиновским Е.Д.

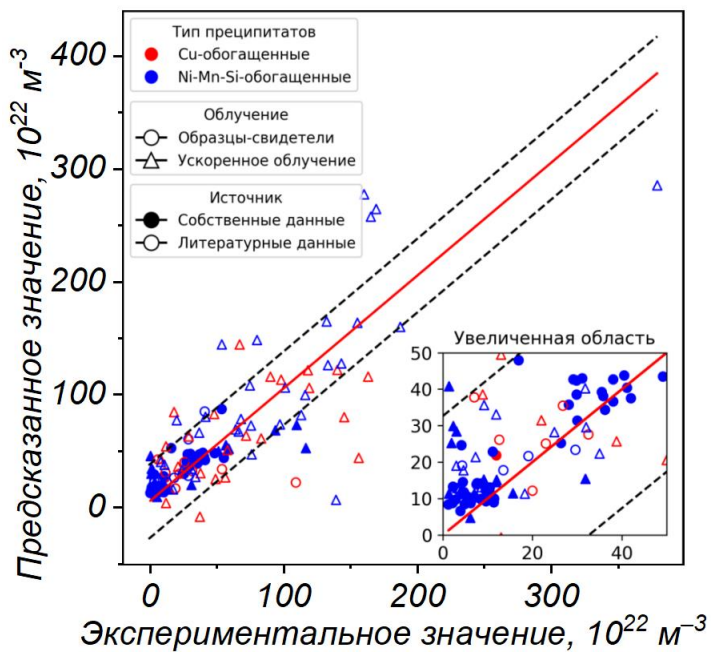
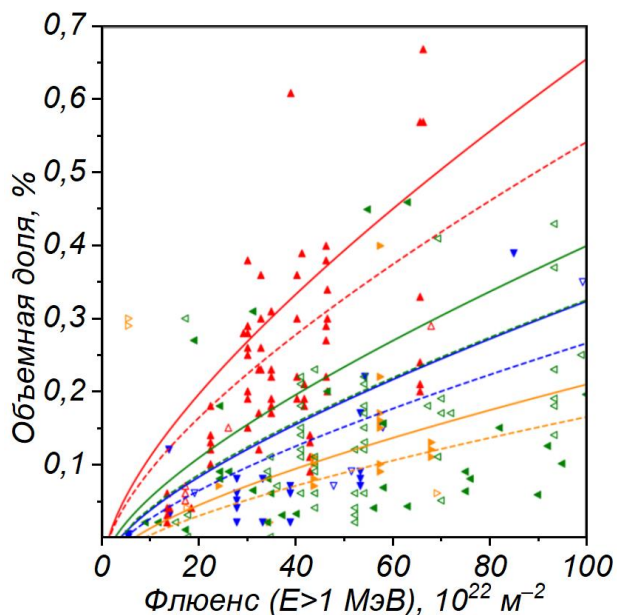
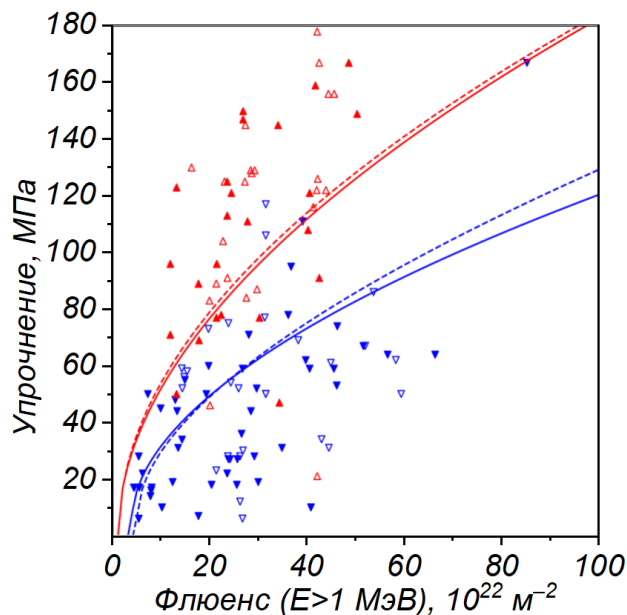


Рисунок 13 – Сопоставление прогнозных и истинных значений плотности precipитатов в наборе данных для разработанной модели



- ▼— ОМ ВВЭР-1000 (2Cr-1Ni-0.4Mn-0.03Cu)
- - - ▽ - - - ОМ ВВЭР-1000 (ускоренное облучение)
- ▲— МШ ВВЭР-1000 (2Cr-1.7Ni-0.8Mn-0.03Cu)
- - - △ - - - МШ ВВЭР-1000 (ускоренное облучение)



- ◀— Сталь КР PWR (0.7Ni-1.0Mn-0.06Cu)
- - - ◀ - - - Сталь КР PWR (ускоренное облучение)
- ▶— ОМ ВВЭР-440 (2Cr-0.2Ni-0.3Mn-0.1Cu)
- - - ▷ - - - ОМ ВВЭР-440 (ускоренное облучение)

а)

б)

Рисунок 14 – Смоделированные дозовые зависимости плотности precipитатов (а) для сталей КР ВВЭР и PWR и радиационного упрочнения (б) для сталей КР ВВЭР-1000 в сопоставлении с экспериментальными данными для сталей близкого состава

В отличие от непараметрических ансамблевых моделей (например, градиентного бустинга), разработанная модель дает гладкие, физически интерпретируемые дозовые зависимости, подтверждающие основные выявленные закономерности радиационного фазообразования (рисунок 14 (а)):

- затухающую дозовую зависимость плотности и объемной доли преципитатов с насыщением для сталей с высоким содержанием Cu и низким содержанием Ni при низких значениях флюенса и без насыщения для сталей с высоким содержанием Ni в характерном для эксплуатации интервале флюенсов;

- отсутствие значимого влияния флукса на объемную долю при существенном влиянии на плотность и размер преципитатов;

Это показывает применимость разработанной модели для достоверного прогноза параметров радиационно-индуцированных преципитатов в зависимости от химического состава и условий облучения.

Прогнозные зависимости параметров преципитатов использованы для расчета радиационного упрочнения сталей КР в рамках разработанной методологии. Смоделированы дозовые зависимости радиационного упрочнения для сталей ВВЭР-1000/1200 типичных составов: 1Ni–0,4Mn (мас.%), соответствующего ОМ и 1,7Ni–0,8Mn (мас.%), соответствующего МШ (см. рисунок 14 (б)). Для сталей КР ВВЭР-1000 с известными значениями сдвига предела текучести, полученными по результатам испытаний на статическое растяжение, также выполнено прогнозирование радиационного упрочнения (рисунок 15). Предсказанные значения радиационного упрочнения демонстрируют хорошее соответствие с экспериментальными значениями (рисунки 14б и 15) без характерного для результатов механических испытаний разброса, обусловленного неоднородностью химического состава толстостенных заготовок КР.

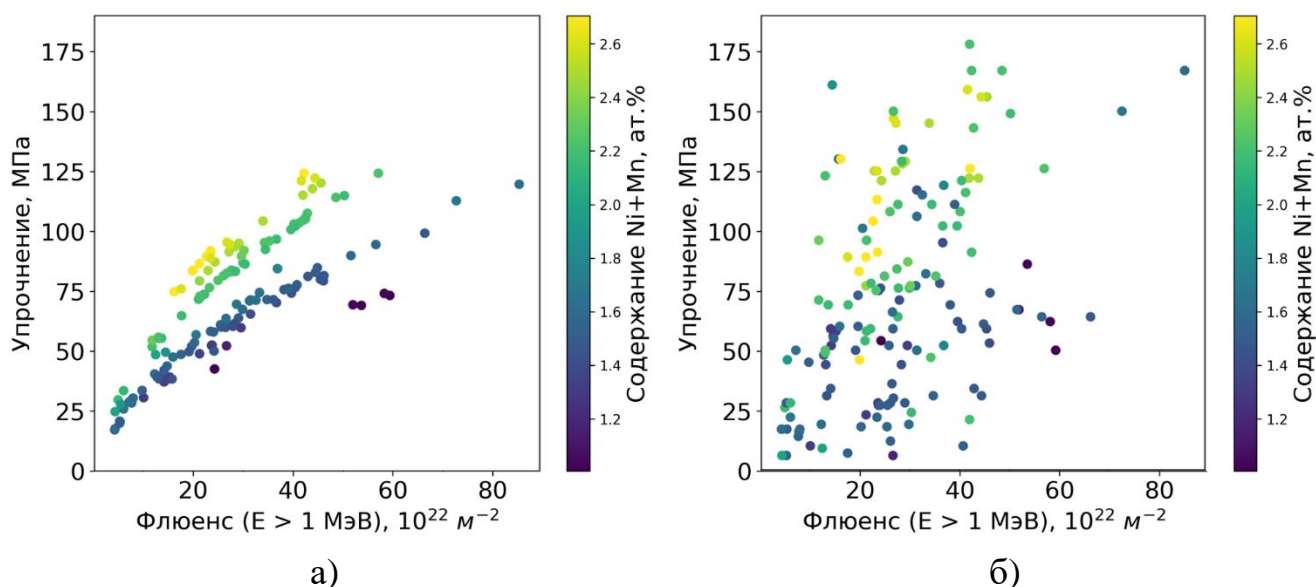


Рисунок 15 – Прогнозные значения радиационного упрочнения и соответствующие им экспериментальные данные для сталей КР ВВЭР-1000

Разработанная модель машинного обучения, обученная на значениях плотности и объемной доли радиационно-индуцированных преципитатов, полученных по результатам АЗТ-исследований, обеспечивает высокую предсказательную способность, физически интерпретируема и применима для прогнозирования радиационного

упрочнения сталей КР легководных реакторов в широком диапазоне составов на основе структурных параметров с хорошим соответствием с экспериментальными данными. В дальнейшем она может быть расширена за счет получения дополнительных данных, а также интегрирована в общую модель радиационного охрупчивания, включающую более точную оценку вклада дислокационных петель и учет неупрочняющего механизма охрупчивания вследствие зернограничной сегрегации примесных и легирующих элементов.

Таким образом, в работе разработана и верифицирована на большом массиве экспериментальных данных методология прогнозирования радиационного упрочнения сталей КР на основе сформированной Базы данных параметров преципитатов. Разработанная методология обеспечивает предварительную экспресс-оценку прочностных характеристик сталей КР в рамках цифрового материаловедения на основании доступной исходной информации (состав стали, температура облучения, флюенс и флакс быстрых нейтронов) в любой момент их эксплуатации без проведения длительных и дорогостоящих облучательных экспериментов, испытаний и исследований. Полученные результаты применимы как при оценке ресурса действующих энергоблоков, так и при разработке новых сталей КР под заданные условия эксплуатации перспективных проектов ВВЭР. Это сокращает сроки разработки и аттестации материалов, что повышает конкурентоспособность российских реакторных технологий на мировом рынке.

Полученные в работе результаты позволяют значительно повысить научную обоснованность, надежность и достоверность прогнозирования поведения сталей КР на всех стадиях эксплуатации, включая продленный ресурс, в том числе за счет восстановительного отжига, на основе физических механизмов радиационной повреждаемости сталей в условиях нейтронного облучения. Выявленные закономерности универсальны и применимы для сталей КР как российских (ВВЭР-440/1000/1200 и новых проектов), так и зарубежных (PWR) легководных реакторов, и формируют научную основу для разработки новых поколений радиационно-стойких сталей КР.

Результаты исследований были использованы при научном обосновании безопасной эксплуатации действующих и проектируемых энергоблоков АЭС с ВВЭР, включая продление сроков эксплуатации, в том числе за счет проведения первичных (ВВЭР-1000) и повторных (ВВЭР-440) восстановительных отжигов корпусов. Это позволило повысить обоснованность продления суммарного срока службы корпусов реакторов до 60 лет – результат, имеющий стратегическое значение для отечественной и мировой атомной энергетики.

В четвертой главе «Закономерности фазообразования и радиационной повреждаемости сталей внутрикорпусных устройств» установлены, систематизированы и физически обоснованы закономерности радиационного фазообразования, а также его влияния на служебные характеристики сталей ВКУ в условиях длительной

эксплуатации, основанные на результатах собственных АЗТ-исследований [1,17–20] в сопоставлении с литературными данными, теоретическими представлениями и результатами моделирования, а также на сопоставлении с закономерностями, обнаруженными в сталях КР.

Предложена и экспериментально обоснована **физическая концепция радиационного фазообразования в сталях ВКУ** в зависимости от химического состава, температуры облучения, повреждающей дозы и скорости ее набора [1].

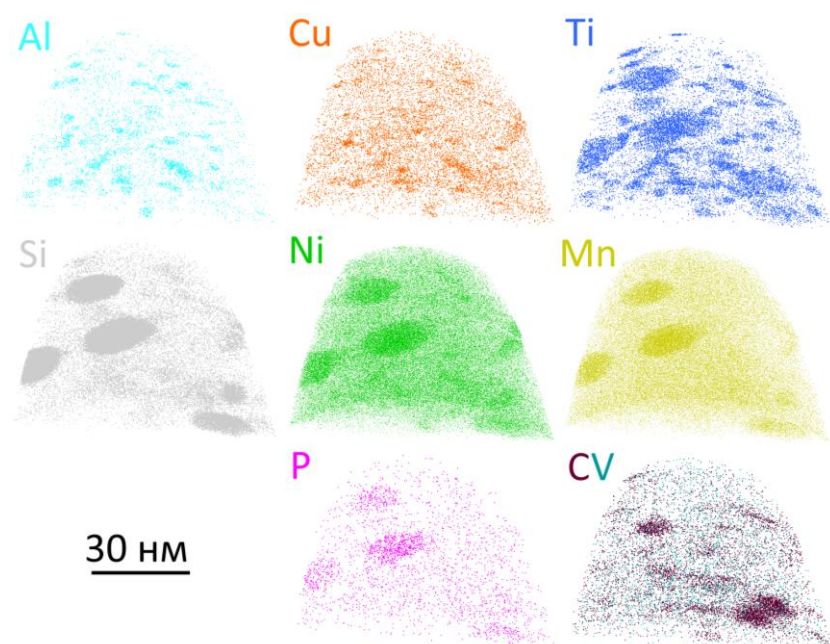
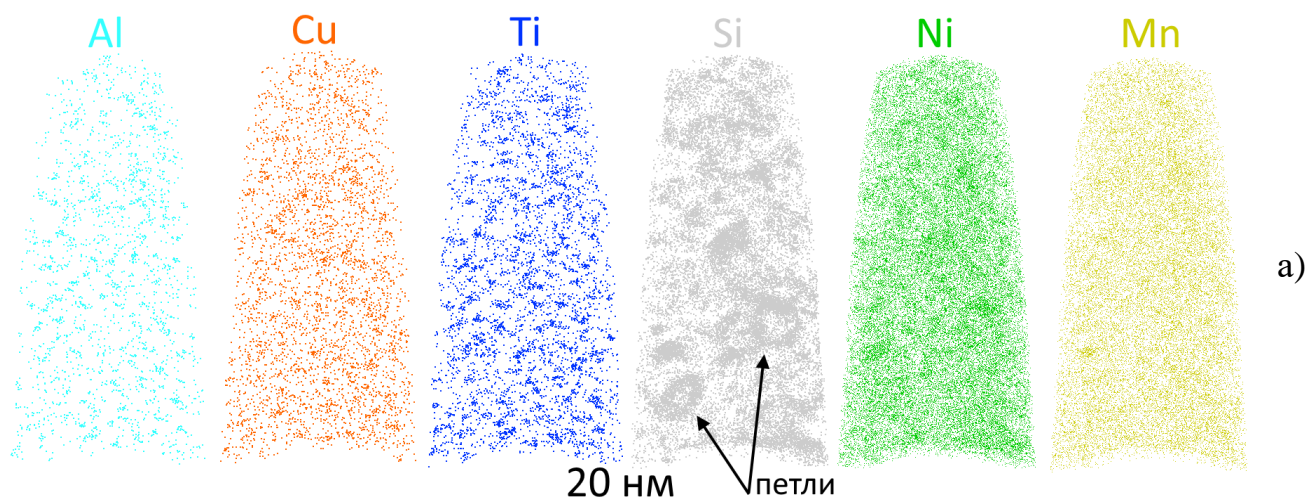


Рисунок 16 – Типичные АЗТ-карты распределения элементов в образцах ВКУ после облучения: в условиях реакторов ВВЭР до дозы 7,9 сна при 280°C (а), в БОР-60 до дозы 130 сна при 330–355 °С (б)

Систематизированы механизмы и кинетика фазообразования в сталях ВКУ в сопоставлении со сталями КР и показано, что в сталях ВКУ могут образоваться преципитаты двух типов. При этом:

- Преципитаты на основе Ni–Al–Cu(–Ti) (рисунок 16) с размерами ~ 2,5–3 нм и плотностью 10^{23} – 10^{24} м⁻³, в зависимости от температуры облучения. Их зарождение происходит преимущественно в каскадах смещений из-за сильной связи надразмерных атомов Al, Cu, Ti с вакансиями, аналогично Cu-обогащенным преципитатам в

сталих КР. Ключевую роль играет содержание примесного элемента – алюминия: при его содержании < 0,05 ат.% такие преципитаты не образуются.

- Преципитаты на основе Ni–Si(–Ti) (рисунок 16) формируются в основном за счет радиационно-индуцированной сегрегации (РИС) на кластерах точечных дефектов и дислокационных петлях, подобно Ni–Si–Mn-преципитатам в сталях КР; могут быть как мелкими (с размерами ~3 нм и плотностью 10^{23} – 10^{24} м⁻³, при температурах облучения до ~330°C), так и более крупными выделениями (с размерами > 5 нм и плотностью 10^{22} – 10^{23} м⁻³, которые определяются также методами ПЭМ и идентифицируются как G/γ'-фаза, в зависимости от состава стали). Объемная доля преципитатов на основе Ni–Si(–Ti) тем выше, чем выше содержание Ni в стали, и ограничена содержанием Si и Ti в материале.

Совокупность имеющихся экспериментальных данных позволяет считать, что преципитаты на основе Ni–Si(–Ti) являются предвыделениями G и/или γ'-фазы (Ni₁₆Si₇M₆, Ni₃Si), а преципитаты на основе Ni и Cu–Al/Cu–Al–Ti – предвыделениями γ'-фазы Ni₃(Ti,Al,Cu) (рисунок 17).

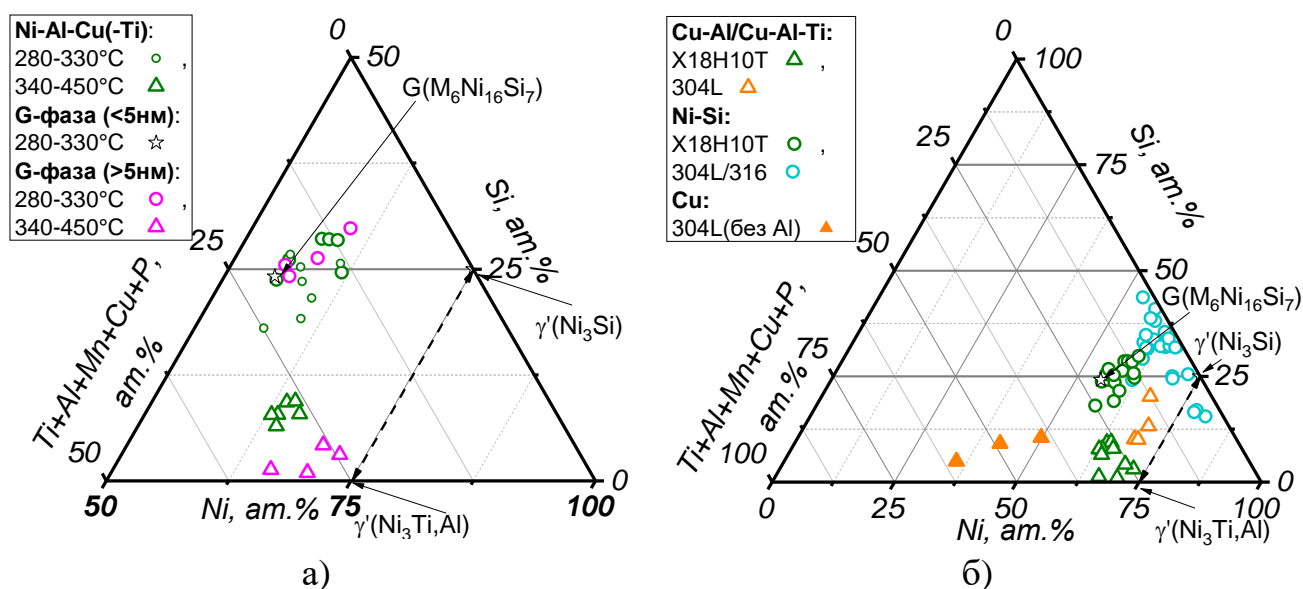


Рисунок 17 – Составы преципитатов (без учета Fe) в исследованных сталях ВКУ реакторов ВВЭР и PWR, облученных в различных условиях: ВВЭР (а), ВВЭР и PWR (б)

На основании анализа собственных и литературных данных установлено, что **процессы фазообразования** в сталях ВКУ (в характерных условиях эксплуатации ВКУ реакторов ВВЭР и PWR) в значительной степени **завершаются уже при повреждающих дозах 10–15 сна** (рисунок 18). Уровень насыщения для каждого исследованного состояния определяется конкретным составом материала и температурой облучения. Максимальная объемная доля всех преципитатов не превышает 3–4% (определяется составом и условиями облучения). Их объемная доля тем выше, чем выше содержание Ni в стали, и ограничена содержанием Si и Ti в материале.

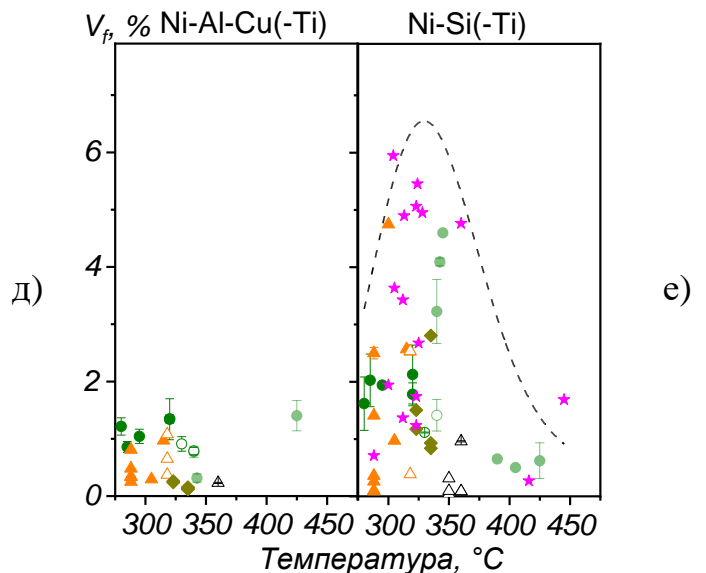
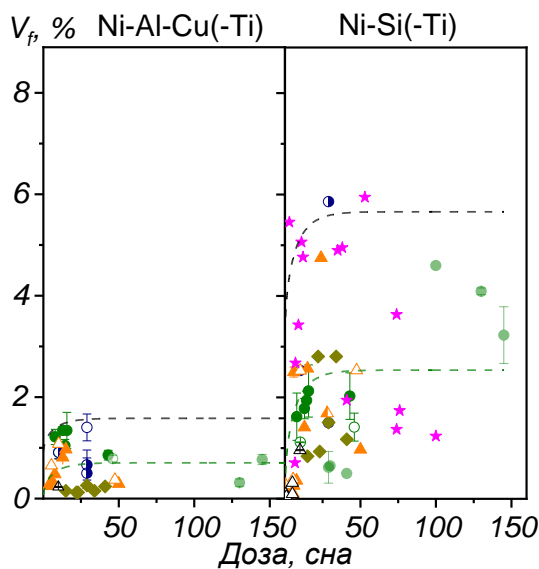
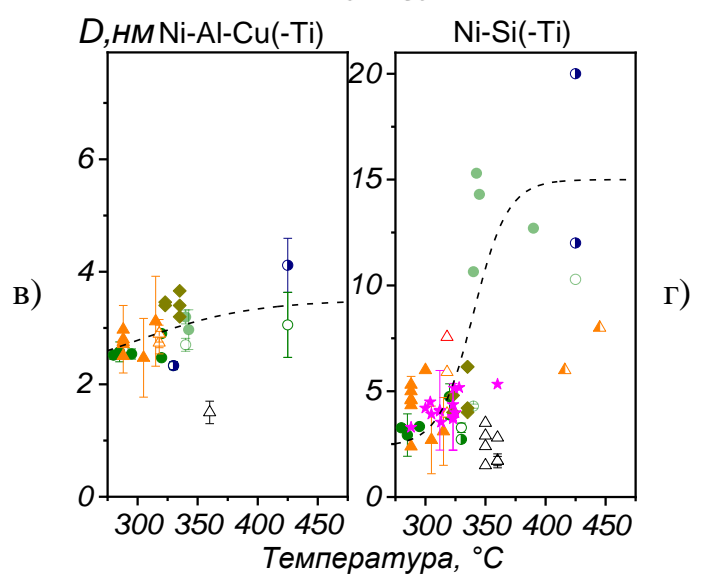
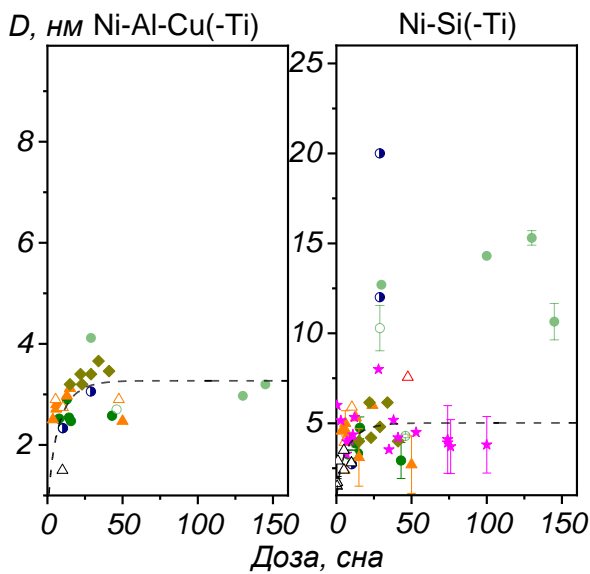
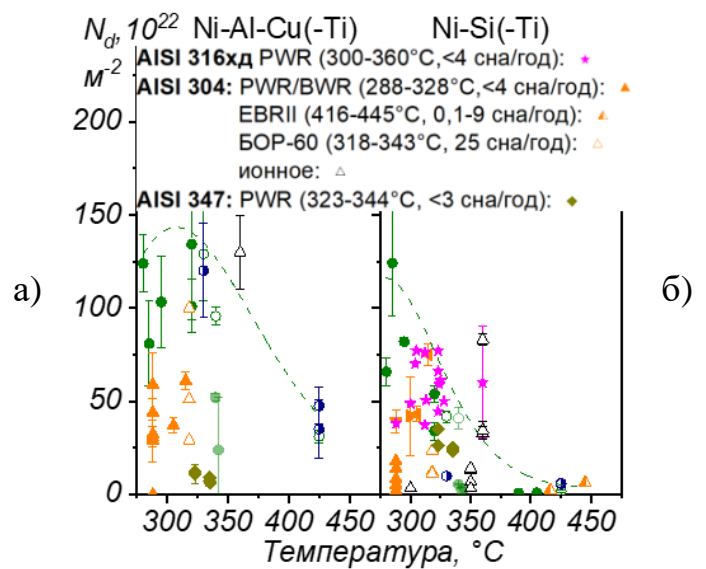
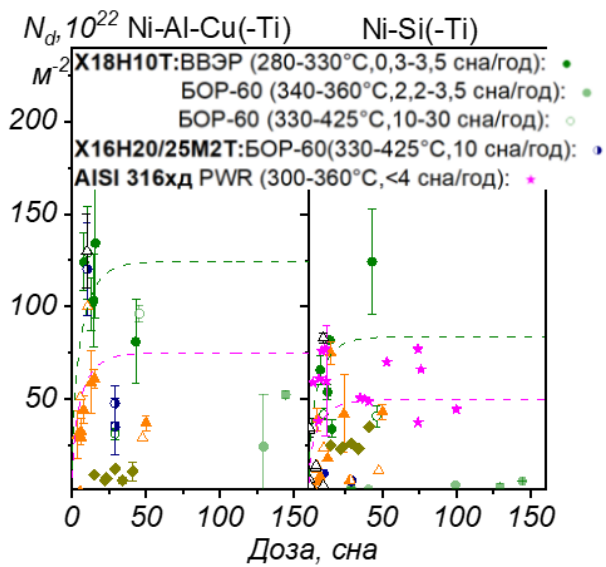


Рисунок 18 – Дозовые (а,в,д) и температурные (б,г,е) зависимости параметров преципитатов в исследованных сталях ВКУ с использованием литературных данных: плотность (а,б), средние размеры (в,г) и объемная доля (д,е)

Сопоставление полученных данных для ВКУ с закономерностями фазообразования в сталях КР показывает, что по мере облучения объемная доля преципитатов для сталей КР (с повышенным содержанием Ni) стремится к насыщению только при повреждающих дозах за пределами интервала эксплуатации, в то время как в сталях ВКУ выходит на насыщение при повреждающих дозах ~10–15 сна (в пределах проектных значений). Это означает, что процесс фазообразования в изменение свойств КР будет вносить определяющий вклад во всем интервале эксплуатации, тогда как для сталей ВКУ не будет изменяться после 10–15 сна, и при увеличении срока эксплуатации изменение свойств сталей ВКУ будет определяться, в основном, распуханием.

Поскольку температура облучения и накопленная повреждающая доза для различных элементов ВКУ могут меняться в широких пределах, важно было выявить **влияние условий облучения на параметры преципитатов в сталях ВКУ**. Показано (рисунок 18), что с **ростом температуры облучения** (280–450 °С) плотность преципитатов снижается, а их размер увеличивается (в большей степени для предвыделений/выделений G-фазы, см. рисунок 19), в результате чего максимум плотности преципитатов наблюдается при 280–300 °С, а объемной доли – при ~350 °С. Состав преципитатов при этом все больше приближается к равновесным G- и γ' -фазам (рисунок 17). При этом при повышенных температурах облучения (выше 330 °С) в стали X18H10T наблюдается образование крупных (> 10 нм) выделений G/ γ' -фазы (в зависимости от состава стали), а также мелких преципитатов на основе Ni–Cu–Al–Ti, по составу близких к Ni₃(Ti,Al).

С увеличением температуры облучения плотность предвыделений G-фазы резко снижается до нуля (при температуре ~340 °С). При этом плотность и объемная доля крупных выделений G-фазы в интервале температур 280–450 °С сначала растет, а затем снижается с дальнейшим ростом температуры (см. рисунок 19 (а) и (в)). Характер изменения размера G-фазы с температурой облучения при этом носит пороговый характер. При температуре облучения ~340 °С наблюдается резкое увеличение размера крупной G-фазы, которая также обнаруживается и идентифицируется методом ПЭМ. Максимальная плотность крупных выделений G-фазы соответствует температурам облучения ~320 °С, а объемная доля – температурам облучения ~350 °С. Такой характер изменения параметров предвыделений и выделений G-фазы свидетельствует о том, что при температурах до 330 °С их образование имеет преимущественно радиационно-индуцированную природу, тогда как при более высокой температуре – в большей степени термическую природу.

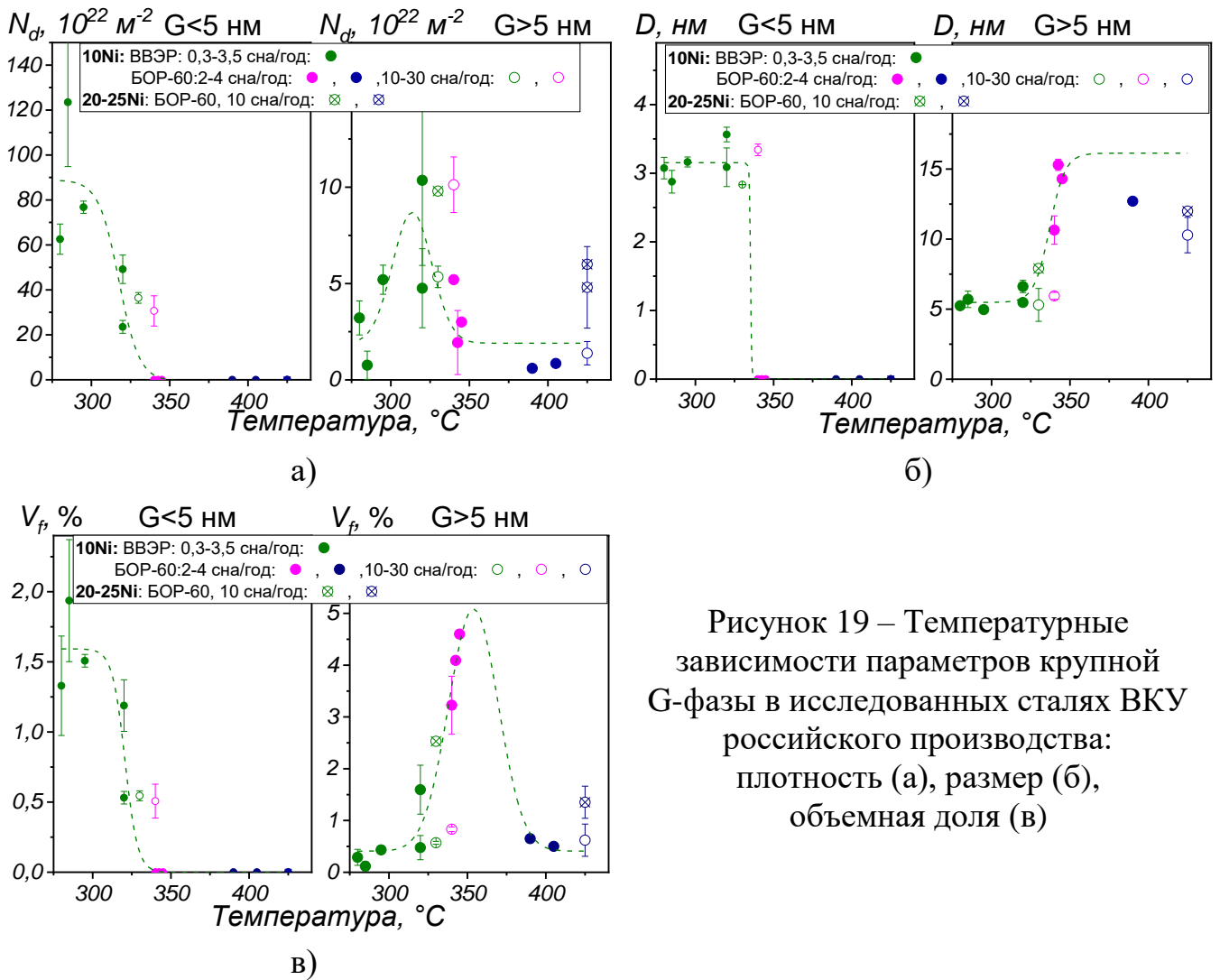


Рисунок 19 – Температурные зависимости параметров крупной G-фазы в исследованных сталях ВКУ российского производства: плотность (а), размер (б), объемная доля (в)

Поскольку при прогнозировании поведения материалов используют результаты ускоренных облучений, необходимо было оценить корректность экстраполяции данных ускоренных испытаний на условия длительной эксплуатации. Показано, что **увеличение скорости набора дозы**, как и в случае сталей КР, приводит к увеличению плотности и уменьшению размера precipitates всех типов (рисунок 18). При этом объемная доля предвыделений G и γ' -фаз (размерами до $\sim 3-4 \text{ nm}$) практически не зависит от флакса, что также было показано для Ni-Si-Mn-обогащенных precipitates в сталях КР. В то же время для крупных выделений G-фазы увеличение флакса приводит к значимому снижению объемной доли, особенно при ионном облучении (рисунки 19 и 20). Это свидетельствует о преимущественно радиационной природе образования предвыделений G и γ' -фаз и существенном термическом вкладе в образование крупных выделений G/γ' -фазы в сталях ВКУ.

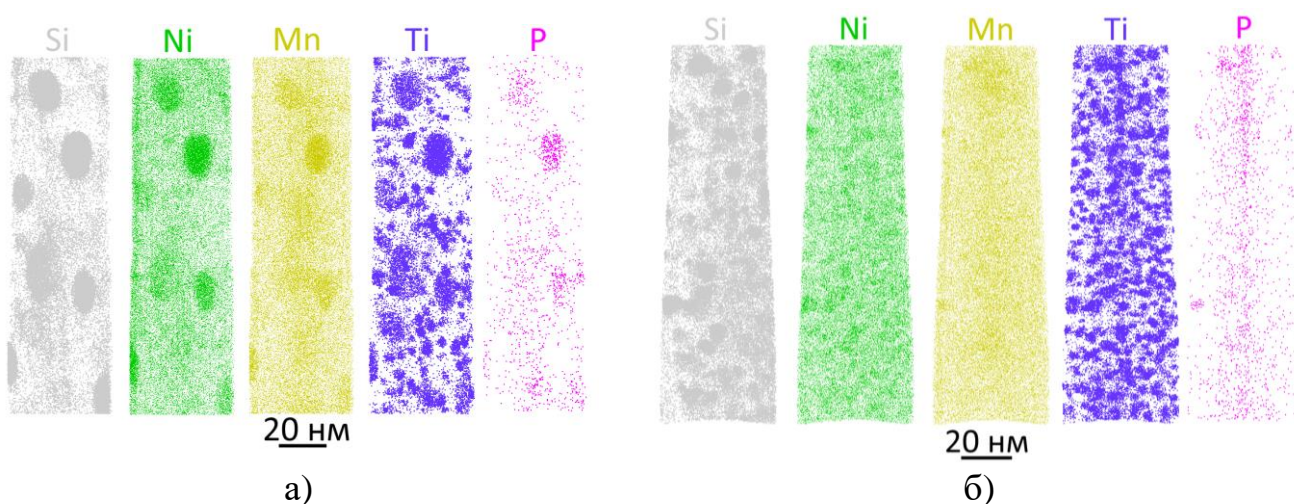


Рисунок 20 – АЗТ-карты распределения элементов (Si, Ni, Mn, Ti и P) в образцах стали X18H10T после облучения в реакторе БОР-60 при температурах облучения в интервале 330–360°С со скоростью набора дозы: 2,2–3,5 сна/год (а) и 30 сна/год (б)

Увеличение скорости набора дозы «сдвигает» температурную зависимость образования G/γ' -фаз в область более высоких температур. Это связано с тем, что при ускоренном облучении уменьшается время для протекания термически контролируемых диффузионных процессов. Аналогичный эффект наблюдается и для других термически контролируемых процессов деградации структуры – радиационного распухания и радиационно-индуцированной сегрегации, что необходимо учитывать при прогнозировании работоспособности сталей ВКУ по результатам ускоренных облучений.

Таким образом, экспериментально продемонстрирована необходимость учета влияния скорости набора дозы при температурах облучения свыше 330–340°С, при которых образуются крупные выделения G-фазы низкой плотности при низкой скорости набора дозы и преимущественно предвыделения высокой плотности – при высокой скорости набора дозы. Это может привести к недооценке их упрочняющего вклада при экстраполяции данных ускоренного облучения на реальные условия реакторной эксплуатации, а также влияет на радиационное распухание (способствует снижению распухания при увеличении скорости набора дозы).

Для оценки совместного влияния на прочностные характеристики материала выявлена **взаимосвязь фазообразования с другими механизмами деградации структуры и свойств сталей ВКУ** (образованием дислокационных петель, радиационно-индуцированной сегрегацией и порообразованием). Выявленные закономерности объяснены через единые механизмы их образования, контролируемые процессами миграции и поглощения точечных дефектов.

Установлена прямая связь между параметрами precipитатов на основе Ni–Si–Ti и дислокационных петель (рисунок 21 (а)), а также между их объемной долей и уровнем РИС (рисунок 21 (б)), что подтверждает их образование в результате РИС на дислокационных петлях. Отсутствие явной взаимосвязи между precipитатами на основе

Ni–Al–Cu–Ti, дислокационными петлями и уровнем РИС указывает на отсутствие высокого вклада РИС в их образование.

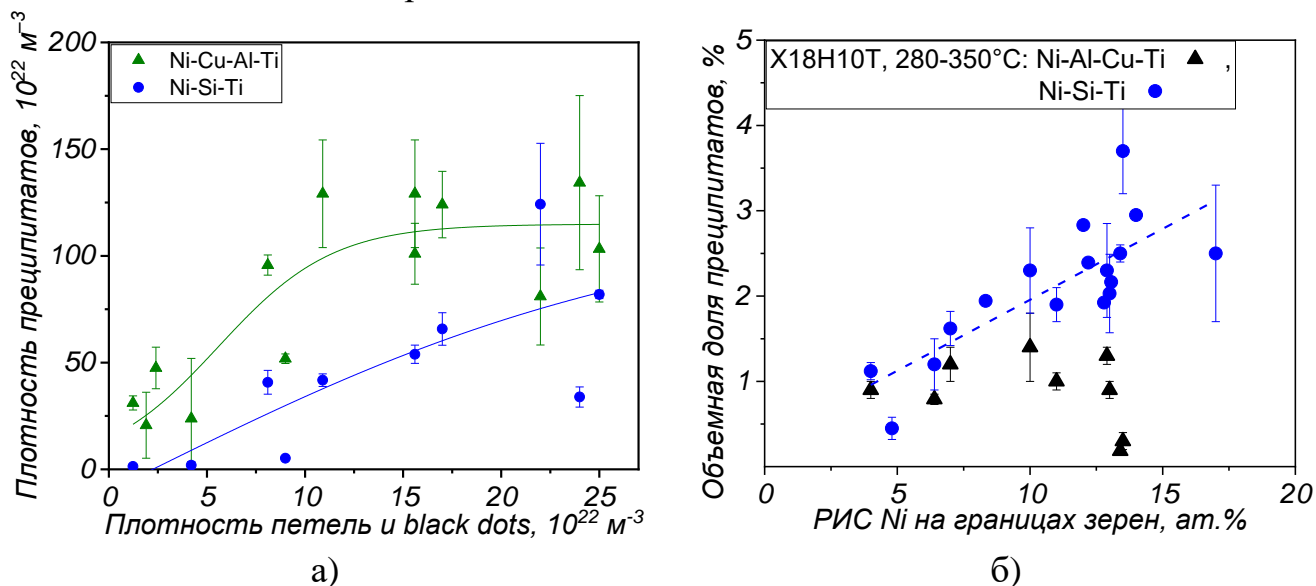


Рисунок 21 – Корреляция плотности преципитатов с суммарной плотностью петель (а), а также объемной доли преципитатов и уровня РИС (б) в сталях ВКУ

Выявлена отрицательная корреляция между плотностью преципитатов и уровнем радиационного распухания (рисунок 22): чем выше плотность преципитатов (как эффективных стоков), тем ниже распухание. Модели распухания, основанные на теории скорости, в качестве стоков учитывают границы зерен, петли, дислокации и сами поры. При этом, поскольку плотность преципитатов превалирует над плотностью всех остальных стоков, их также необходимо учитывать при моделировании распухания и последующей оценки работоспособности элементов ВКУ.

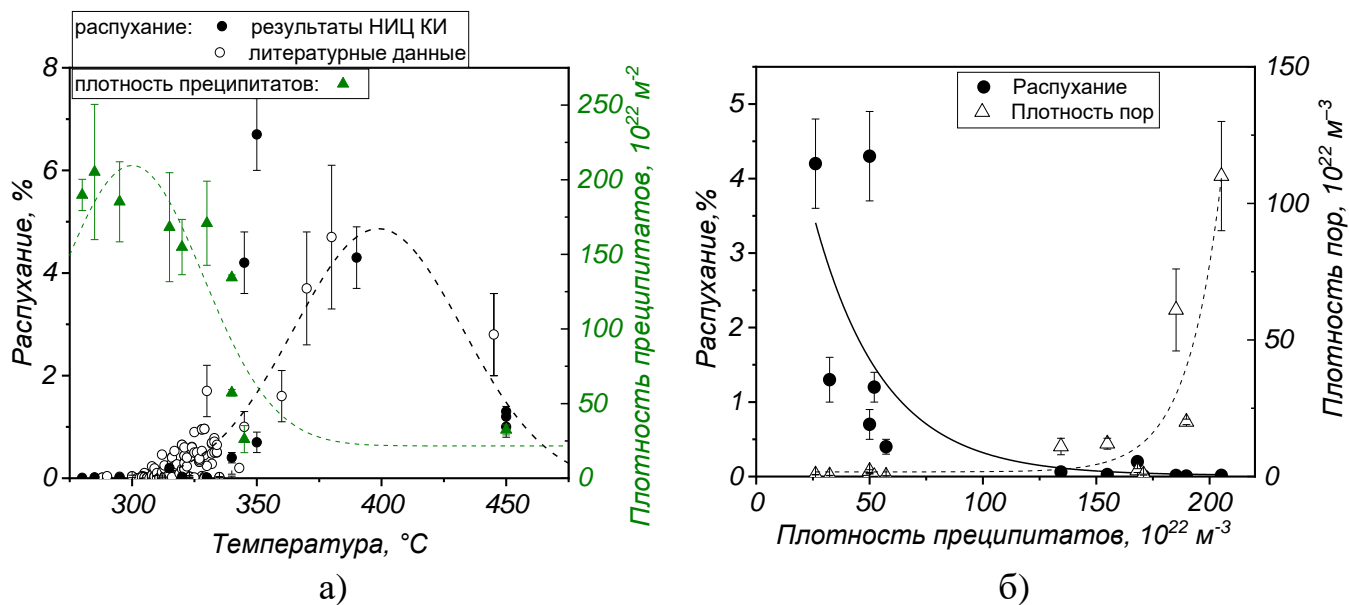


Рисунок 22 – Сопоставление плотности преципитатов и распухания стали X18H10T при низких скоростях набора дозы: температурные зависимости (а) и корреляция между плотность преципитатов, плотностью пор и распуханием (б)

Показано, что образование преципитатов в процессе эксплуатации сталей ВКУ приводит к существенному обеднению матрицы преципитат-образующими элементами. Это необходимо учитывать, особенно при высоких дозах и/или температурах облучения, при которых обеднение матрицы никелем может привести к дестабилизации аустенита, образованию α -фазы, способствующей радиационному охрупчиванию, а также к усилению набухания элементов ВКУ.

С использованием подхода к прогнозированию радиационного упрочнения, предложенного для сталей КР, учитывающего взаимосвязь между структурными элементами, а также степень структурного совершенства преципитатов, выполнено **прогнозирование радиационного упрочнения сталей ВКУ** по структурным параметрам. При этом для корректной оценки вклада радиационно-индуцированных структурных элементов в радиационное упрочнение были выбраны и обоснованы значения коэффициентов прочности барьеров α для каждого структурного элемента с учетом следующих особенностей:

- РИС на дислокационных петлях разного типа изменяет их взаимодействие с дислокациями, и, в результате РИС, петли типа black dots при АЗТ-исследованиях они неотличимы от мелких предвыделений G-фазы (на порядок более высокой плотности).
- Мелкие преципитаты и сформировавшиеся крупные фазы представляют собой барьеры разной прочности для движения дислокаций. Поэтому, как и в случае КР, для предвыделений использован коэффициент барьерной прочности, учитывающий их размер (следовательно, степень их структурного совершенства).
- Коэффициент прочности барьера для пор также зависит от их размера: часто используемое в литературе значение $\alpha = 1$ применимо для крупных пор, образующихся в сталях ВКУ при температурах облучения $>330^\circ\text{C}$. В условиях эксплуатации ВВЭР в большинстве случаев средние размеры пор $<1-2$ нм, в связи с чем значение коэффициента прочности барьера α для них должно быть меньше.
- Ассоциация крупных G/ γ' фаз с другими элементами структуры (стоками в виде границ зерен, петель Франка, межфазных границ, пор) также понижает их барьерную прочность по сравнению с выделениями, расположенными в матрице, для которых используют коэффициент $\alpha = 1$.

По аналогии с оценкой упрочняющего вклада преципитатов в сталях КР, для мелких преципитатов и пор в сталях ВКУ была использована зависимость коэффициента α от размера препятствия движению дислокаций. При этом в результате параметризации были выбраны следующие значения коэффициента Ω : $\Omega_i=2,0$ ГПа для преципитатов на основе Ni-Cu-Al-Ti, $\Omega_i=2,4$ ГПа для преципитатов на основе Ni-Si-Ti и $\Omega_v=4,6$ ГПа для пор. Для крупных (> 10 нм) выделений G и γ' -фазы было использовано значение $\alpha=0,45$, для мелких петель (black dots) $\alpha=0,2$ и для петель Франка $\alpha=0,25$.

Таким образом, обоснован выбор значений коэффициентов барьерного упрочнения элементов структуры сталей ВКУ, при использовании которых расчетные оценки демонстрируют хорошее соответствие ($R^2=0,87$) с результатами механических испытаний (рисунок 23 (а)).

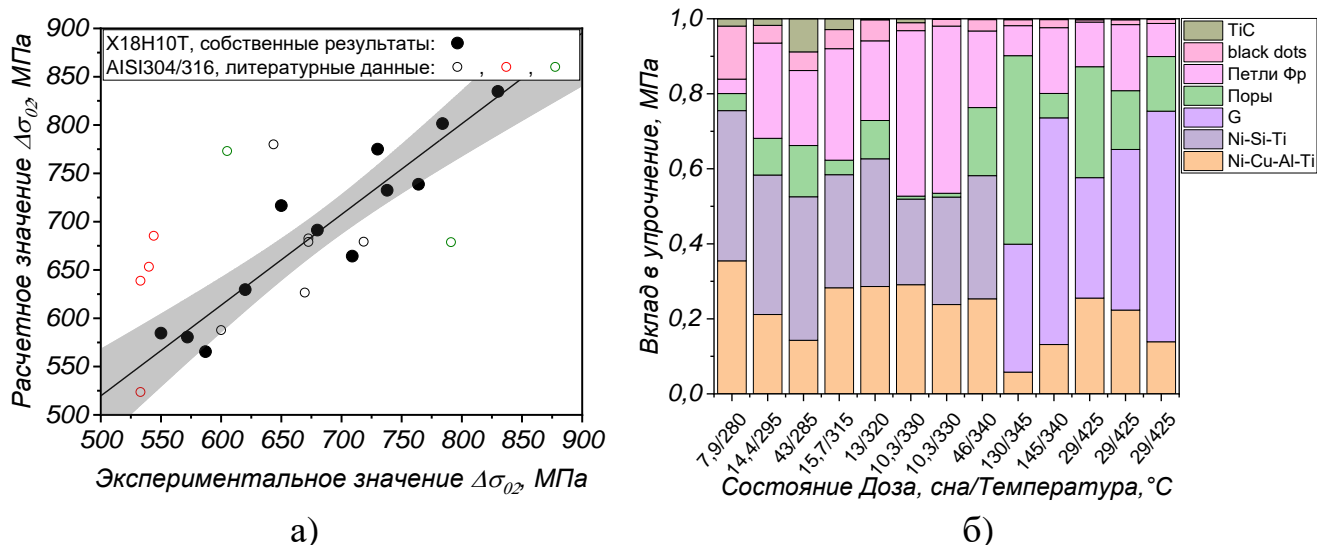


Рисунок 23 – Сопоставление расчетной оценки и экспериментальных значений радиационного упрочнения (а) и расчетная оценка вкладов (в %) различных структурных элементов в радиационное упрочнение (б)

С использованием этих коэффициентов оценен вклад различных структурных составляющих в радиационное упрочнение сталей ВКУ ВВЭР в зависимости от условий облучения (рисунок 23 (б)) и показано, что:

- В начальных условиях эксплуатации ВКУ ВВЭР основной вклад в радиационное упрочнение сталей ВКУ вносят радиационно-индуцированные преципитаты (предвыделения G и γ' фаз) при значимом вкладе дислокационных петель. Вклад карбидов в радиационное упрочнение минимален, а вклад пор проявляется при высоких дозах и/или температурах облучения.

- С повышением температуры облучения (от 280 до 425°C) снижается вклад петель и предвыделений и увеличивается вклад крупных выделений G/ γ' - фаз и пор.

- С увеличением содержания никеля в стали (от 10 до 25 мас.%) увеличивается вклад предвыделений и выделений G/ γ' - фаз и снижается вклад пор.

Практически важным является прогнозирование свойств сталей ВКУ при продлении сроков эксплуатации, то есть расширение диапазона повреждающих доз до уровней 120–150 сна. Следует ожидать, что при дальнейшем увеличении повреждающей дозы вклад в упрочнение от радиационно-индуцированных предвыделений и выделений G/ γ' фаз и радиационных дефектов не будет существенно увеличиваться вследствие выхода их плотности и объемной доли на насыщение при дозах ~10–15 сна (см. рисунок 24). При этом характер изменения плотности и объемной доли преципитатов соответствует виду нормативной зависимости изменения предела текучести.

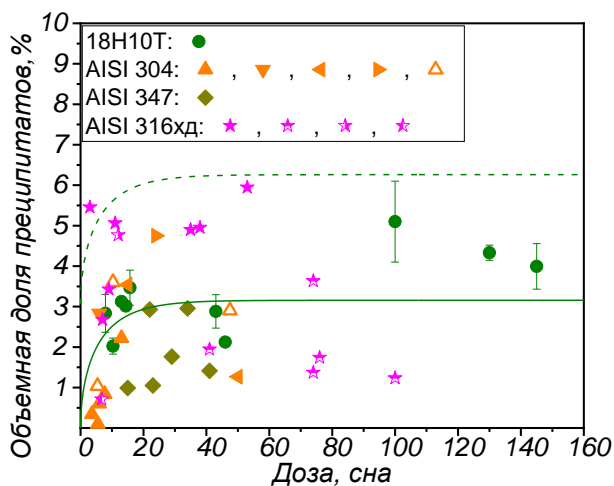


Рисунок 24 – Дозовая зависимость суммарной объемной доли преципитатов в сталях ВКУ, облученных в различных условиях: в энергетических и исследовательских реакторах при температурах 280–350 °С: Сплошной линией показана обработка данных зависимостью вида $y = A \cdot \sqrt{(1 - \exp(-C \cdot D))}$, пунктирной линией – 95%-й доверительный интервал [1]

В этой связи распухание станет основным фактором, ограничивающим работоспособность изделий ВКУ. Несмотря на то, что в исследованных элементах ВКУ, облученных в реакторах ВВЭР, распухание минимально (ниже значений, характерных для стадии установившегося распухания), с ростом повреждающей дозы его уровень увеличивается. Это особенно актуально для толстостенных элементов ВКУ (участков выгородки ВВЭР-1000), где температура вследствие γ -разогрева может достигать 380°С, а повреждающие дозы при продлении срока службы до 60 лет достигнут 120 сна, что способствует интенсификации распухания. С учетом выявленных особенностей фазообразования, при этих температурах создаются наиболее благоприятные условия для порообразования по сравнению с более низкими температурами облучения: сочетание повышенной подвижности вакансий с низкой плотностью преципитатов (как стоков) при высокой их объемной доле, приводящей к обеднению твердого раствора элементами, снижающими распухание. Представленные в работе результаты показывают, что для адекватной оценки работоспособности элементов ВКУ необходим комплексный учет влияния фазообразования на распухание и служебные характеристики сталей.

Таким образом, в работе представлена физически обоснованная общая концепция фазообразования в сталях КР и ВКУ, включающая закономерности фазообразования, его взаимосвязь с другими процессами радиационной деградации структуры и их совместное влияние на служебные характеристики материалов. Полученные результаты значительно повышают научную обоснованность, надежность и достоверность прогнозирования поведения сталей КР и ВКУ действующих и перспективных АЭС с реакторами ВВЭР и РWR в условиях нейтронного облучения, включая продление сроков эксплуатации, а также способствуют физически обоснованному совершенствованию моделей радиационной повреждаемости конструкционных материалов. Разработанная методология прогнозирования радиационного упрочнения по структурным параметрам является основой для предварительной экспресс-оценки прочностных характеристик сталей КР и ВКУ в рамках цифрового материаловедения

и формирует научную основу для целенаправленной разработки новых радиационно-стойких конструкционных материалов для атомной энергетики.

ОБЩИЕ ВЫВОДЫ

1. Разработана и верифицирована методологическая основа АЗТ-анализа радиационного фазообразования в реакторных материалах, включающая оптимизацию методики и интерпретации результатов АЗТ-исследований, а также разработку корректирующих подходов для обобщенного анализа собственных и литературных данных.

2. Впервые сформирована с учетом разработанного подхода репрезентативная «База данных параметров преципитатов», включающая 420 элементов, сформированных на основе 880 экспериментальных точек по сталям КР и ВКУ реакторов ВВЭР и PWR в широком диапазоне химических составов, облученных нейтронами в энергетических и исследовательских реакторах до флюенсов/доз, соответствующих эксплуатации элементов КР и ВКУ легководных реакторов, включая продленный срок службы до 60–90 лет.

3. Впервые сформулирована общая концепция радиационного фазообразования в сталях КР и ВКУ в зависимости от химического состава материала и условий облучения с учетом результатов моделирования и современных теоретических представлений о диффузии растворенных атомов. При этом показано, что образуются преципитаты двух типов:

- на основе Cu/Cu-Al-Ti, зарождающиеся преимущественно в каскадах смещений из-за сильной связи надразмерных атомов с вакансиями;
- на основе Ni-Si-Mn/Ni-Si-Ti, образующиеся преимущественно в результате радиационно-индуцированной сегрегации на кластерах собственных межузельных атомов.

4. Впервые обосновано, что образующиеся в условиях эксплуатации КР и ВКУ легководных реакторов преципитаты на основе Ni (размером до ~3 нм) являются предвыделениями, по составу близкими к G/Г2/γ'-фазам, а фазы стехиометрического состава с размерами больше ~4–5 нм могут образоваться при высоких дозах и/или температурах облучения.

5. Обосновано снижение темпа образования преципитатов в сталях КР и ВКУ с увеличением дозы облучения (флюенса). При этом:

- в сталях КР процессы фазообразования продолжают на протяжении всего времени эксплуатации и являются доминирующим фактором, определяющим изменение свойств;
- в сталях ВКУ фазообразование в значительной степени завершается уже при дозах ~10–15 сна, после чего основным фактором, ограничивающим ресурс материала, становится радиационное распухание.

6. Впервые установлено, что увеличение флакса быстрых нейтронов сопровождается увеличением плотности всех преципитатов (выделений и предвыделений) при уменьшении их размеров. При этом объемная доля предвыделений фаз практически не зависит от флакса, тогда как объемная доля более крупных ($> \sim 5$ нм) выделений фаз снижается с увеличением флакса.

7. Показано, что с увеличением флакса быстрых нейтронов образование крупных выделений G-фазы в сталях ВКУ происходит при более высоких температурах облучения, что наблюдается и для других термически-зависимых процессов (из-за меньшего времени для протекания диффузионных процессов) – РИС, зернограничной сегрегации, распухания.

8. Установлена взаимосвязь фазообразования с другими механизмами радиационной деградации структуры сталей КР и ВКУ вследствие единых процессов миграции и поглощения точечных дефектов. При этом наблюдаются:

- обратная зависимость между плотностями преципитатов и дислокационных петель в сталях КР (при близких условиях облучения);
- прямая зависимость между объемной долей преципитатов и уровнем РИС в сталях КР и ВКУ;
- обратная зависимость между плотностью преципитатов (стоков) и уровнем радиационного распухания в сталях ВКУ.

9. Впервые верифицирована методология прогнозирования радиационного упрочнения сталей КР и ВКУ по структурным параметрам на основе разработанного универсального подхода к выбору коэффициентов барьерной прочности структурных элементов с учетом взаимосвязи между ними, а также степени структурного совершенства преципитатов.

10. Впервые на основе сформированной Базы данных с применением методов машинного обучения разработаны модели, позволяющие с высокой достоверностью предсказывать параметры преципитатов и соответствующее радиационное упрочнение сталей КР в зависимости от состава и условий облучения.

11. Установленные и подтвержденные экспериментально физические закономерности фазообразования и его влияния на служебные характеристики сталей КР и ВКУ в процессе длительной эксплуатации, в том числе за счет восстановительных отжигов, создают научную основу цифрового материаловедения и могут быть использованы при:

- проведении экспресс-оценки прочностных характеристик сталей КР и ВКУ;
- верификации различных моделей радиационной повреждаемости материалов с учетом особенностей фазообразования;
- оптимизации составов существующих и разработке новых радиационно-стойких материалов для перспективных проектов ВВЭР.

Основные публикации по теме диссертации:

Публикации в изданиях, рекомендованных ВАК РФ

1. **Федотова С.В.**, Кулешова Е.А. Закономерности радиационно-индуцированного фазообразования в сталях реакторов ВВЭР // Вопросы атомной науки и техники. Серия Физика ядерных реакторов – 2025 – Т. 1 – с. 102–130.
2. **Федотова С.В.** Особенности интерпретации результатов исследований радиационно-индуцированной эволюции структуры сталей корпусов реакторов методом атомно-зондовой томографии // Вопросы атомной науки и техники. Серия Физика ядерных реакторов – 2025 – Т. 5 – с. 131–157.
3. Marquis E., Araullo-Peters V., Dong Y., Etienne A., **Fedotova S.**, Fujii K., Fukuya K., Kuleshova E., Lopez A., London A., Lozano-Perez S., Nagai Y., Nishida K., Radiguet B., Schreiber D., Soneda N., Thuvander M., Toyama T., Sefta F., Chou P. On the Use of Density-Based Algorithms for the Analysis of Solute Clustering in Atom Probe Tomography // Data Proceedings of the 18th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors – 2017 – Vol 2 – P. 881-897.
4. Dong Y., Etienne A., Frolov A., **Fedotova S.**, Fujii K., Fukuya K., Hatzoglou, C., Kuleshova E., Lindgren K., London A., Lopez A., Lozano-Perez S., Miyahara Y., Nagai, Y., Nishida K., Radiguet, B., Schreiber D., Soneda N., Thuvander M., Toyama T., Wang J., Sefta F., Chou P., Marquis E. Atom Probe Tomography Interlaboratory Study on Clustering Analysis in Experimental Data Using the Maximum Separation Distance Approach // Microscopy and microanalysis – 2019 – Vol.25 (2) – P. 356-366.
5. Marquis E.A., Araullo-Peters V., Etienne A., **Fedotova S.**, Fuji K., Fukuya K., Kuleshova E., Legrand A., London A., Lozano-Perez S., Nagai Y., Nishida K., Radiguet B., Schreiber D., Soneda N., Thuvander M., Toyama T., Sefta F., Chou P. A round robin experiment: analysis of solute clustering from atom probe tomography data // Microscopy and Microanalysis. – 2016 – Т. 22 – P. 666-667.
6. Kuleshova E.A., Zhuchkov G.M., **Fedotova S.V.**, Maltsev D.A., Frolov A.S., Fedotov I.V. Precipitation kinetics of radiation-induced Ni-Mn-Si phases in VVER-1000 reactor pressure vessel steels under low and high flux irradiation // J. Nucl. Mater. – 2021 – Vol. 553 – #153091 – P. 1-11.
7. Kuleshova E., Fedotov I., Maltsev D., **Fedotova S.**, Zhuchkov G., Potekhin A. Phase Formation Features of Reactor Pressure Vessel Steels with Various Ni and Mn Content under Conditions of Neutron Irradiation at Increased Temperature // Metals – 2023 – Vol. 13, № 4 – P. 654-668.
8. Kuleshova E.A., **Fedotova S.V.**, Zhuchkov G.M., Erak A.D., Saltykov M.A., Dementyeva M.M., Alekseeva E.V. Degradation of RPV steel structure after 45 years of operation in the VVER-440 reactor // J. Nucl. Mater. – 2020 – Vol. 540 – #152362 – P. 1-13.
9. **Fedotova S.V.**, Kuleshova E.A., Gurovich B.A., Frolov A.S., Maltsev D.A., Zhuchkov G.M., Fedotov I.V. APT-studies of phase formation features in VVER-440 RPV weld and base metal in irradiation-annealing cycles // J. Nucl. Mater. – 2018 – Vol. 511 – P. 30–42.

10. **Fedotova S.**, Kuleshova E. The Effect of Operational Factors on Phase Formation Patterns in the Light-Water Reactor Pressure Vessel Steels // *Metals* – 2023 – Vol. 13, № 9 – P. 1586-1617.
11. **Fedotova S.V.**, Kuleshova E.A., Maltsev D.A., Saltykov M.A. Complex study of grain boundary segregation in long-term irradiated reactor pressure vessel steels // *J. Nucl. Mater.* – 2020 – Vol. 528 – #151865 – P. 1-8.
12. Kuleshova E.A., Mal'tsev D.A., **Fedotova S.V.** Grain boundary embrittlement of steels of VVER-1000 reactor vessels under long-term operation // *Metal Science and Heat Treatment* – 2019 – Vol. 61, № 7 – 8 – P. 463-471.
13. Кулешова Е.А., **Федотова С.В.**, Мальцев Д.А., Потехин А.А. Тенденции деградации структуры сталей КР ВВЭР-1000, определяющей их работоспособность при сроке службы свыше 60 лет // *Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов* – 2023 – Т.1 – с. 33-47.
14. **Федотова С.В.**, Кулешова Е.А. Прогноз радиационного упрочнения на основе экспериментально определенных структурных параметров в сталях корпусов реакторов с высоким содержанием меди в процессе циклов облучения // *Вопросы атомной науки и техники. Серия Материаловедение и новые материалы* – 2024 – Т. 3 (124) – с. 61–91.
15. Kuleshova E.A., Gurovich B.A., **Fedotova S.V.**, Zhuchkov G.M., Frolov A.S., Maltsev D.A., Saltykov M.A., Dementyeva M.M. Comparison of the high Ni VVER-1000 weld microstructure under the primary irradiation and reirradiation // *J. Nucl. Mater.* – 2020 – Vol. 540 – #152384 – P. 1-9.
16. **Fedotova S.**, Malinovskiy E., Kuleshova E. Prediction of VVER and PWR Reactor Pressure Vessel Steels Radiation Hardening Using Atom Probe Tomography Data and Machine Learning Methods // *J. Nucl. Mater.* – 2026 – принята к печати.
17. Кулешова Е.А., **Федотова С.В.**, Мальцев Д.А., Фролов А.С., Степанов Н.В., Сафонов Д.В., Марголин Б.З., Сорокин А.А. Радиационно-индуцированная структура аустенитных сталей с различным содержанием никеля под действием нейтронного облучения в реакторах СМ-3 и БОР-60 // *Вопросы материаловедения* – 2022 – №4 (112) – с. 121-156.
18. Kuleshova E.A., **Fedotova S.V.**, Gurovich B.A., Frolov A.S., Maltsev D.A., Stepanov N.V., Margolin B.Z., Minkin A.J., Sorokin A.A. Microstructure degradation of austenitic stainless steels after 45 years of operation as VVER-440 reactor internals // *J. Nucl. Mater.* – 2020 – Vol.533 – #152124 – P.1-14.
19. Кулешова Е.А., **Федотова С.В.**, Гурович Б.А., Фролов А.С., Мальцев Д.А., Марголин Б.З., Минкин А.И., Сорокин А.А. Исследование состояния металла внутрикорпусных устройств реактора ВВЭР после эксплуатации в течение 45 лет. Часть 3. Микроструктура и фазовый состав // *Вопросы материаловедения* – 2020 – №3 (103) – с. 1-24.
20. Gurovich B.A., Kuleshova E.A., Frolov A.S., Maltsev D.A., Prikhodko K.E., **Fedotova S.V.**, Margolin B.Z., Sorokin A.A. Investigation of high temperature annealing effectiveness for recovery of radiation-induced structural changes and properties of 18Cr-10Ni-Ti austenitic stainless steels // *J. Nucl. Mater. Elsevier B.V* – 2015 – Vol. 465. – P. 565–581.

Учебные пособия:

21. Кулешова Е.А., Гурович Б.А., Фролов А.С., **Федотова С.В.**, Мальцев Д.А., Приходько К.Е., Крикун Е.В., Кутузов Л.В., Учебное пособие Методы исследования наноразмерных фазовых выделений в реакторных материалах с использованием трансмиссионной электронной микроскопии и атомно-зондовой томографии НИЦ «Курчатовский институт», Москва – 2016 – 128 с.

Монография:

22. Кулешова Е.А., Гурович Б.А., **Федотова С.В.**, Фролов А.С., Мальцев Д.А. Монография Радиационно-индуцированная деградация структуры конструкционных материалов водо-водяных реакторов НИЦ «Курчатовский институт», – 2022 – 462 с ISBN 978-5-00004-077-5

Материалы конференций:

23. **Федотова С.В.**, Малиновский, Е.Д., Кулешова, Е.А. Прогнозирование изменения свойств сталей корпусов реакторов при длительной эксплуатации по результатам атомно-зондовых исследований // тезисы доклада в сборнике трудов «Новые материалы: Перспективные технологии и методы исследования материалов. Сборник тезисов докладов 23-й Международной школы-конференции имени Б.А. Калина для молодых ученых и специалистов» – 2025.

Благодарности

Автор выражает большую благодарность Руководителю ОРМИТ КК НБИКС-ПТ д.т.н., проф. Гуровичу Б.А. за развитие в отделении всесторонних исследований реакторных материалов, своему научному консультанту д.т.н., проф. Кулешовой Е.А. за постоянную поддержку и помощь на всех этапах работы, своим коллегам из Отдела аналитических методов исследований и перспективных технологий за предоставление материалов для исследований методом АЗТ, полезные консультации, дружескую поддержку и помощь в работе, а также д.т.н. Ераку Д.Ю. за обоснование и проведение облучательных экспериментов и к.т.н. Журко Д.А. за постановку и проведение механических испытаний.