

文章编号: 1674-9669(2017)02-0024-07
DOI: 10.13264/j.cnki.ysjskx.2017.02.005

原位观察电子束辐照条件下 SUS316L 钢中辐照肿胀行为

杨苏冰^{a,b}, 杨占兵^{a,b}, 王会^{a,b}, 赵世强^b

(北京科技大学, a.冶金与生态工程学院; b.钢铁冶金新技术国家重点实验室, 北京 100083)

摘要:辐照诱导的过饱和空位聚集形成空洞,进而引起的奥氏体不锈钢辐照肿胀现象会造成核反应堆内结构材料失效,危害反应堆安全.利用超高压电子显微镜,在 300~500 °C 区间内,对 SUS316L 奥氏体不锈钢进行电子束辐照,原位观察辐照过程中空洞演变;辐照结束后,在透射电镜下观察空洞分布,并对空洞尺寸进行测量统计;对比研究不同温度下空洞演变的差异.结果表明:不同温度时电子辐照 30 min 后,可观察到点缺陷簇、位错环和空洞.其中 450 °C 和 500 °C 时,空洞尺寸最大,分别约为 13.3 nm 和 14.5 nm.这是因为辐照温度升高会提高空位扩散能力,最终增大空洞尺寸.研究结果可为预测不同工作温度下奥氏体不锈钢中辐照肿胀提供实验依据.

关键词:电子束辐照;原位观察;过饱和空位;空洞;辐照肿胀

中图分类号: TL341; TF703 **文献标志码:** A

In situ observation of void swelling behavior in SUS316L steel under electron beam irradiation

YANG Subing^{a,b}, YANG Zhanbing^{a,b}, WANG Hui^{a,b}, ZHAO Shiqiang^b

(a. School of Metallurgical and Ecological Engineering;

b. State Key Laboratory of Advanced Metallurgy, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

Abstract: Void swelling in austenitic stainless steel degrades the properties of materials used in reactors due to the accumulation behavior of radiation-introduced excess vacancies, which brings a serious threat to the safety of reactor. In this paper, electron beam irradiations were conducted by high voltage electron microscope in a temperatures range of 300~500 °C, and in situ observation of the void evolution was carried out during irradiations. Void distributions were observed and void sizes were measured using transmission electron microscope after irradiations. The differences among the void evolution under different irradiation temperatures were investigated. The results show that large amounts of point defect clusters, loops, and voids can be observed under electron beam irradiations of different temperatures. Voids formed at 450 °C and 500 °C are the largest, with a size of 13.3 nm and 14.5 nm, respectively. As the irradiation temperature increases, the diffusion of excess vacancies is enhanced, which leads to the enlargement of void size. These results are expected to provide a reference for forecasting the void swelling in austenitic stainless steel under different irradiation temperatures.

Keywords: electron beam irradiation; in-situ observation; excess vacancies; void; void swelling

收稿日期: 2016-11-22

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51471027); 2014 年钢铁冶金新技术国家重点实验室开放基金资助项目(KF14-03); 中央高校基本科研业务费资助项目

通信作者: 杨占兵(1977-), 男, 博士, 副教授, 主要从事高能粒子辐照条件下金属晶体中的非平衡现象及其动力学过程方面的研究,

E-mail: yangzhanbing@ustb.edu.cn.

随着核反应堆服役时间不断增长,功率不断增大,堆中包壳和结构材料用奥氏体不锈钢的辐照肿胀问题日益凸显^[1-5]。辐照肿胀是由材料内空位聚集成空洞所引起,会使材料体积发生膨胀,造成紧固件断裂,危害反应堆安全。现有的抑制肿胀方法有冷加工和添加合金元素^[6-8],但研究表明,经这 2 种方法处理的奥氏体不锈钢所能经受的辐照剂量无法超过 100 dpa^[9-10],远未达到先进核反应堆对奥氏体不锈钢性能的要求。

核反应堆是相对封闭的高危环境,无法原位观察反应堆中奥氏体不锈钢的辐照肿胀行为^[11]。奥氏体不锈钢在核反应堆中应用广泛,其服役温度也相对较宽,如压水堆中工作温度约为 300 ℃^[12],而快堆中工作温度却在 500 ℃左右^[13]。利用超高压电子显微镜, Sekio 等^[14]对奥氏体不锈钢在 450 ℃下的辐照肿胀行为进行原位观察。考虑到工作温度不同,奥氏体不锈钢在核反应堆中的辐照肿胀行为必然也存在差异,因此,有必要对奥氏体不锈钢在其他温度下的辐照肿胀行为进行系统原位观察和分析。

以 SUS316L 奥氏体不锈钢为研究对象,原位观察其在 300~500 ℃区间内电子辐照过程中的辐照肿胀行为,对比分析不同辐照温度下空洞形核及长大的差异,为预测不同工作温度下奥氏体不锈钢辐照肿胀情况提供实验依据。

1 材料及方法

本研究所用材料为 SUS316L 奥氏体不锈钢,其化学成分如表 1 所示。

利用超高压电子显微镜(型号为 JEOL, JEM-ARM1300)对直径为 3 mm 的透射电镜薄膜试样进行电子束辐照。辐照电压 1 250 kV,辐照剂量 3.6 dpa (30 min),辐照温度分别为 300 ℃、350 ℃、400 ℃、450 ℃和 500 ℃。辐照过程中,对辐照区形貌进行原位观察。辐照完成后,利用透射电镜(Tecnai G² F20)观察辐照后空洞分布,并利用 Image-pro plus 软件对空洞尺寸进行测量统计。

2 结果及讨论

2.1 电子束辐照条件下辐照区形貌变化

电子束辐照过程中,试样内不断引入过饱和点缺陷,即空位和间隙原子^[15-16]。为趋于能量平衡,这些过饱和点缺陷会不断扩散迁移,聚集形成位错环、空洞等二次缺陷^[17-18]。以 500 ℃电子束辐照过程中原位观察辐照区形貌变化为例,如图 1 所示。辐照前由于取向差异,晶界两侧视场衬度不同,但并无点缺陷簇、位错环等缺陷组织(图 1(a))。辐照 5 min 后,晶界附近产生大量点缺陷簇,而且越靠近晶界,点缺陷簇的密度越高(见图 1(b))。受晶界的尾闾作用^[19],辐照引入的过饱和点缺陷不断向晶界扩散,导致晶界附近点缺陷相互聚集几率增加,点缺陷簇密度也随之增大。随着辐照时间增长,形成点缺陷簇和位错环的区域也不断增大。辐照 30 min 后,整个辐照区都可以明显观察到点缺陷簇(如图 1(d))。

电子束辐照条件下,不仅有点缺陷簇形成,还可以观察到位错环。利用透射电镜对辐照 30 min 后的位错环形貌进行观察,如图 2 所示。同样以 500 ℃为例,可以看出电子束辐照 30 min 后,试样内形成形态不一的位错环,尺寸也不尽相同,所观察到的最大尺寸将近 300 nm。

2.2 不同温度下空洞的演变

除了点缺陷簇及位错环外,辐照引入的过饱和空位还可聚集形成空洞。空洞的产生可分为形核和长大 2 个过程^[20-21]。即辐照引入的过饱和空位先相互聚集形成空洞核心,然后空洞核不断吸收空位而长大。

对 500 ℃电子辐照条件下空洞的产生及演变进行原位观察,如图 3 所示。辐照前,晶界两侧并无空洞(图 3(a))。当辐照 5 min,辐照剂量达到 0.6 dpa 时,晶界附近已有少量小尺寸空洞形成(见图 3(b)),空洞在此辐照剂量下已完成形核;随着辐照时间不断增加,空洞数量和尺寸不断增大;辐照 30 min 时(辐照剂量为 3.6 dpa),辐照区内清晰可见大量尺寸较大的空洞(见图 3(d))。

表 1 SUS316L 奥氏体不锈钢化学成分/(质量分数,%)

Table 1 Chemical composition of SUS316L austenitic stainless steel/(mass fraction, %)

元素	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	V	Al	N	Fe
含量	0.013	0.20	1.28	0.024	0.001 0	13.32	17.24	2.04	0.04	0.014	0.039 6	余量

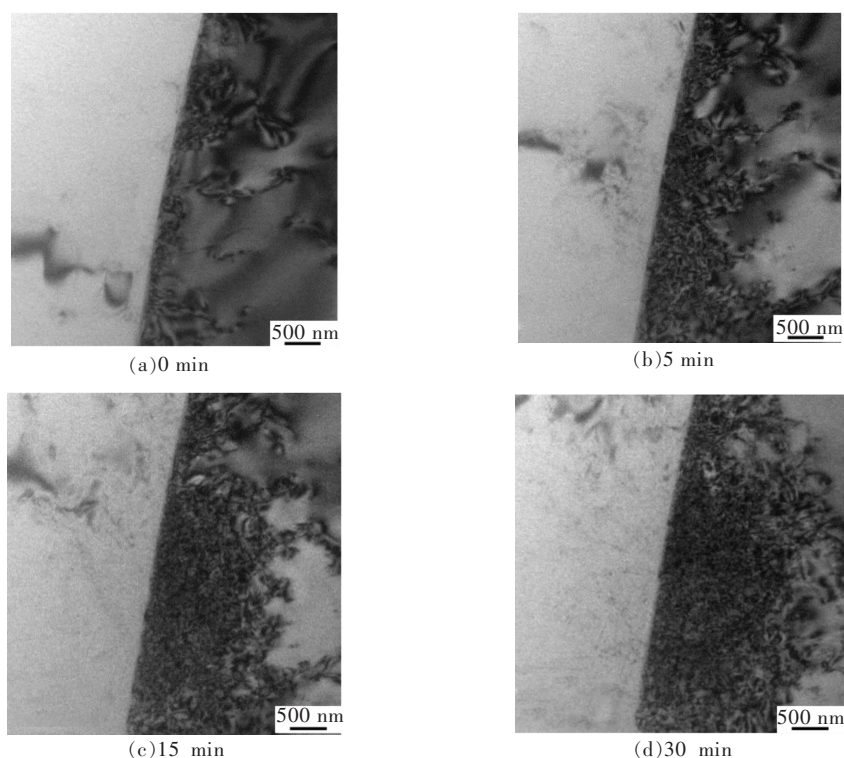


图 1 500 °C 电子辐照下辐照区形貌

Fig. 1 Micrographs of irradiated area under electron irradiation at 500 °C

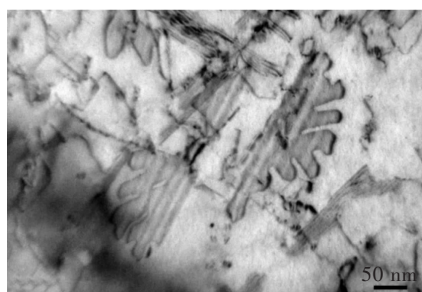


图 2 500 °C 电子束辐照后位错环形貌

Fig. 2 Loops formed after electron irradiation at 500 °C

450 °C、400 °C、350 °C 及 300 °C 电子辐照条件下空洞的演变分别如图 4、图 5、图 6 和图 7 所示。这 4 种辐照温度下样品内也都有空洞生成,但空洞的产生时间及尺寸却存在较大差异。450 °C 时,电子辐照 5 min 后,晶界附近有少量小尺寸空洞形成(如图 4(b)),表明此时的空洞也已完成形核。但随着辐照温度降低,空位扩散能力下降,导致空洞形核所需时间增加。400 °C 时,电子辐照 10 min 后晶界附近仍未观察到空洞,15 min 后晶界附近出现少量小尺寸空洞;而 350 °C 和 300 °C 下分别辐照 15 min 和 25 min 后才观察到空洞。另外,随着温度降低,空洞尺寸也在逐渐下降。300 °C 时,即使辐照 30 min,晶界附近也只能观察到一些尺寸非常小的空洞。

利用透射电镜对辐照 30 min 后的空洞形貌进行观察,如图 8 所示。对比图 8(a)~图 8(d)可知,在 300~500 °C 范围内,辐照温度越高,空洞尺寸越大,这与原位观察的结果相符。经统计 300 °C、350 °C、400 °C、450 °C 和 500 °C 时,空洞的平均尺寸分别为 3.6 nm、5.5 nm、7.9 nm、13.3 nm 和 14.5 nm。

对比 300~500 °C 区间内电子辐照过程中空洞的演变情况(图 3~图 7)可知,450 °C 和 500 °C 时,空洞形核所需时间最短;同时,这 2 种温度下空洞尺寸也远大于其他温度(见图 8)。空洞是空位在三维空间通过扩散而聚集形成的体缺陷。空位的扩散能力随温度增加而增加,因而在本研究中,高温下(如 ≥ 450 °C),空位具有较高扩散能力,易于聚集形成空洞核心并促进空洞长大。低温下(如 ≤ 400 °C),空位扩散能力相对较低,因而空洞形核所需时间增长,空洞长大也受到了限制。因此,通过降低奥氏体不锈钢中空位扩散能力,可以抑制空洞长大,减小辐照肿胀。

3 结 论

1) 300~500 °C 区间内,3.6 dpa 辐照剂量以内,随着电子辐照时间增长,辐照区内点缺陷簇的数量不断增加,尺寸也不断增大。位错环呈现不同形貌,最大尺

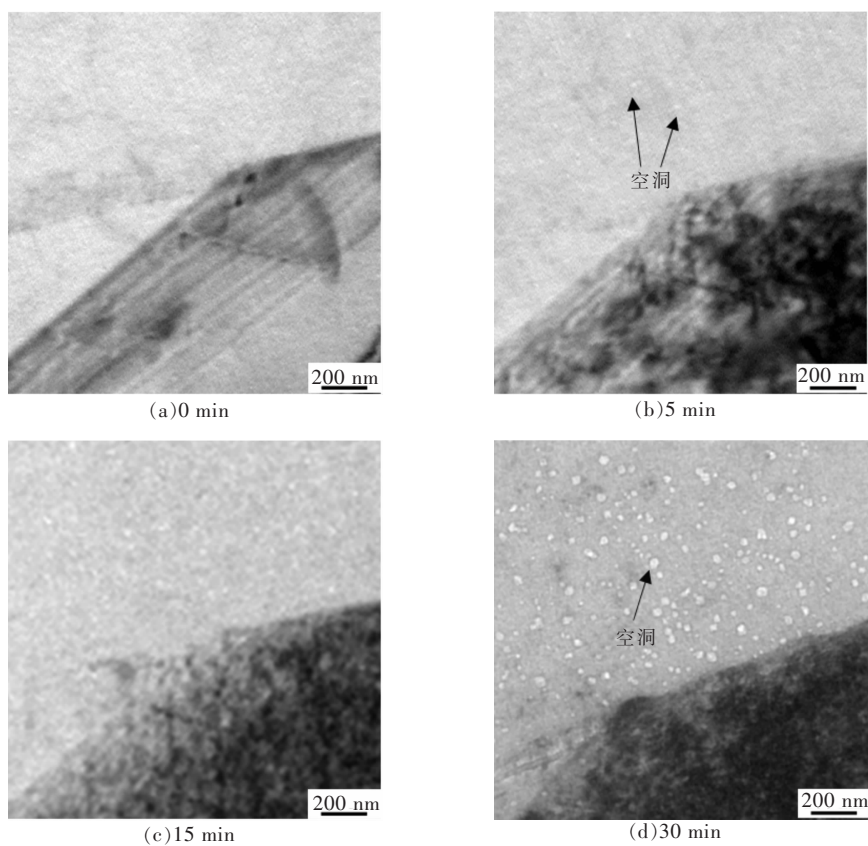


图 3 500 °C 电子辐照过程中空洞的演变过程

Fig. 3 Void evolution under electron irradiation at 500 °C

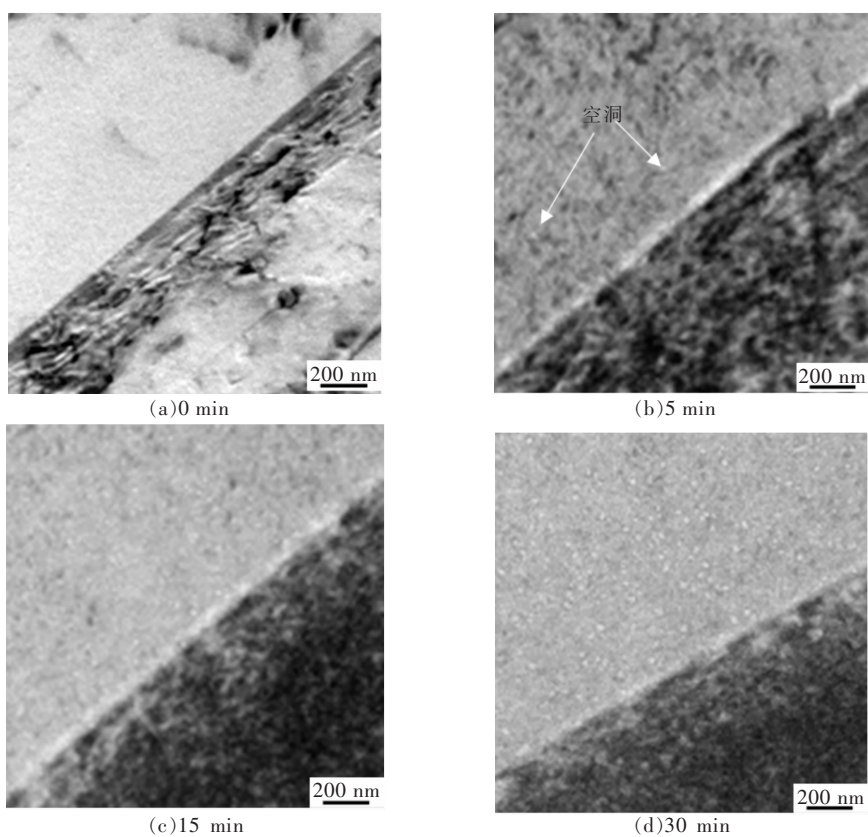


图 4 450 °C 电子辐照过程中空洞的产生及演变过程

Fig. 4 Void evolution under electron irradiation at 450 °C

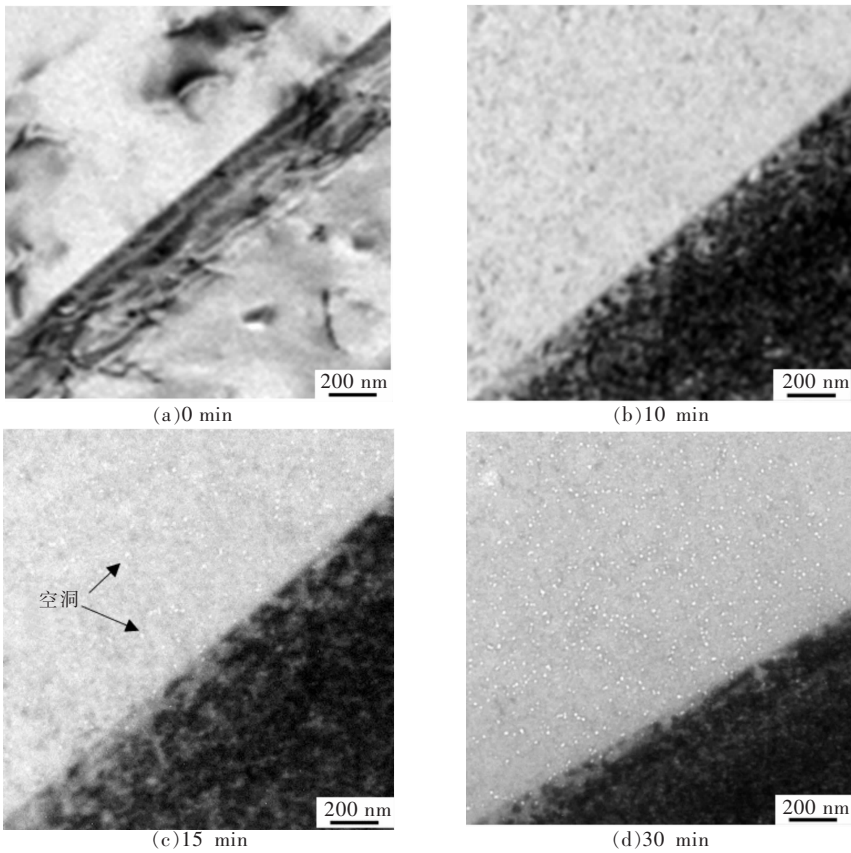


图 5 400 °C电子辐照过程中空洞的产生及演变过程

Fig. 5 Void evolution under electron irradiation at 400 °C

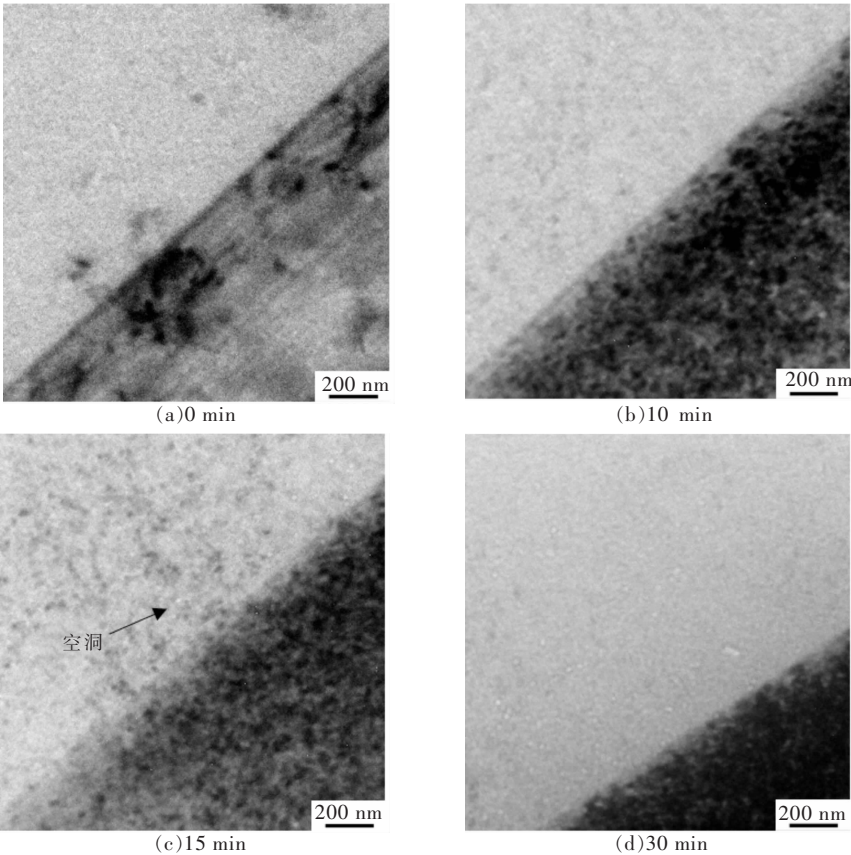


图 6 350 °C电子辐照过程中空洞的产生及演变过程

Fig. 6 Void evolution under electron irradiation at 350 °C

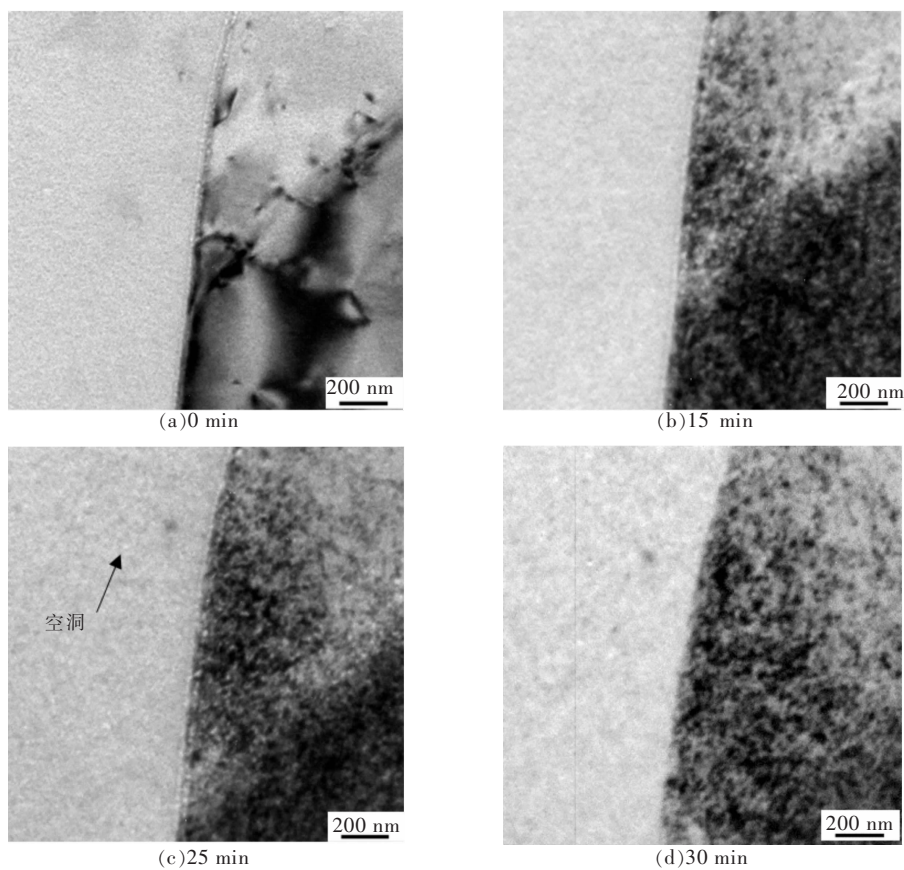


图 7 300 °C 电子辐照过程中空洞的产生及演变过程

Fig. 7 Void evolution under electron irradiation at 300 °C

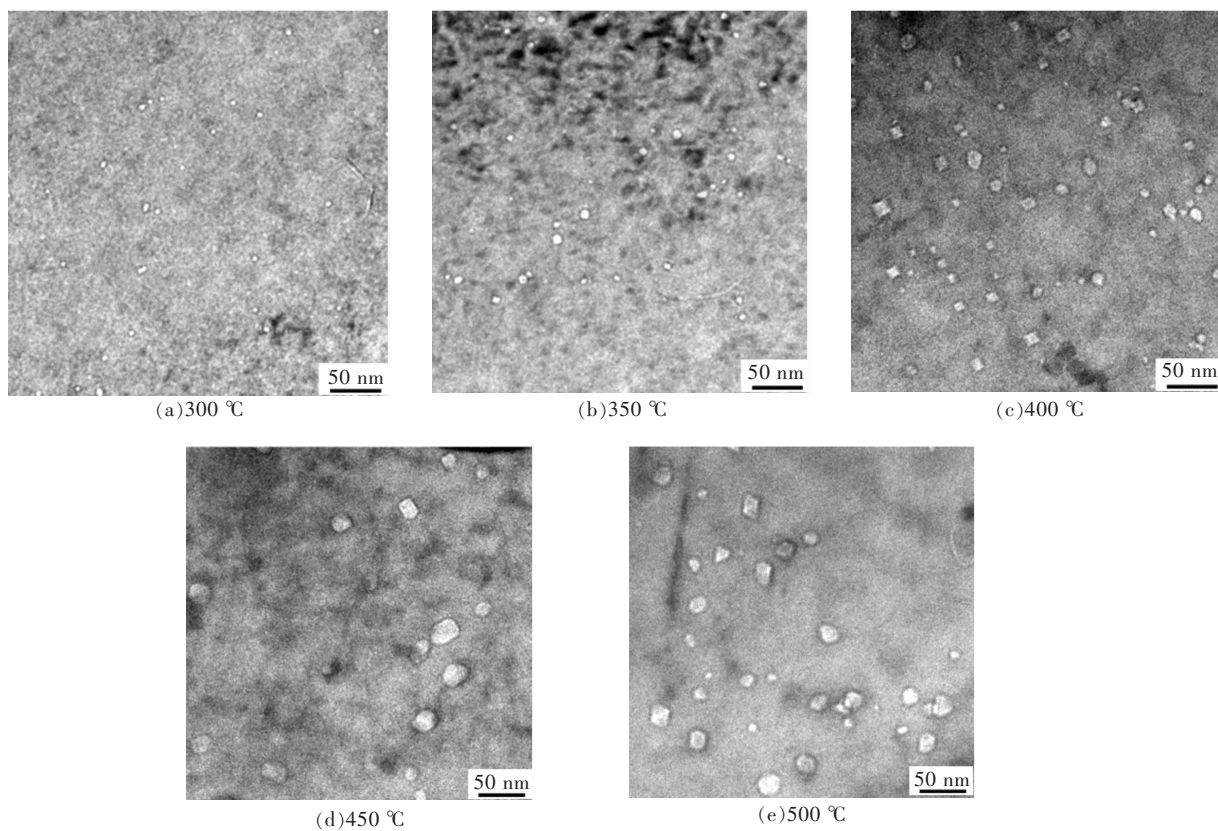


图 8 不同温度下电子辐照 30 min 后空洞形貌

Fig. 8 Void micrographs after 30 min electron irradiation at different temperatures

寸可达 300 nm 左右。

2)300~500 °C 区间内,经 30 min 电子辐照,试样内都有空洞形成。随着辐照温度升高,空洞尺寸不断增大,450 °C 和 500 °C 时尺寸最大,分别为 13.3 nm 和 14.5 nm。该研究结果可为不同工作环境下奥氏体不锈钢中辐照肿胀情况的评估提供实验依据。

参考文献:

- [1] 黄鹤飞,李健健,刘仁多,等.316 奥氏体不锈钢离子辐照损伤中的温度效应研究[J].金属学报,2014,50(10):1189-1194.
- [2] ZINKLE S J, WAS G S. Materials challenges in nuclear energy[J]. Acta Materialia, 2013, 61(3): 735-758.
- [3] YVON P, CARRE F. Structural materials challenges for advanced reactor systems[J]. Journal of Nuclear Materials, 2009, 385(2): 217-222.
- [4] MURTY K L, CHARIT I. Structural materials for Gen-IV nuclear reactors: Challenges and opportunities[J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, 383(1/2): 189-195.
- [5] 叶育伟,陈颖,王永欣,等.316L 不锈钢表面沉积 CrCN 薄膜的结构及性能研究[J].有色金属科学与工程,2014,5(4):49-54.
- [6] HORIKI M, YOSHIE T, HUANG S S, et al. Effects of alloying elements on defect structures in the incubation period for void swelling in austenitic stainless steels[J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, 442(1/2/3): S813-S816.
- [7] GILBERT E R, GARNER F A. The influence of cold-work level on the irradiation creep and swelling of AISI 316 stainless steel irradiated as pressurized tubes in the EBR-II fast reactor[J]. Journal of Nuclear Materials, 2007,367/370:954-959.
- [8] 袁慎铁,赖朝彬,陈英俊,等.含铌、钒、钛 EQ47 海洋平台用钢的高温塑性研究[J].有色金属科学与工程,2014,5(2):52-56.
- [9] AKASAKA N, YAMAGATA I, UKAIS. Effect of temperature gradients on void formation in modified 316 stainless steel cladding[J]. Journal of Nuclear Materials, 2000, 283/284/285/286/287(1):169-173.
- [10] ZINKLE S J, BUSBY J T. Structural materials for fission & fusion energy[J]. Materials Today, 2009, 12(11): 12-19.
- [11] ZINKLE S J, GHONIEM N M. Prospects for accelerated development of high performance structural materials[J]. Journal of Nuclear Materials, 2011, 417(1/2/3): 2-8.
- [12] FUKUYA K, NAKANO M, FUJII K, et al. Role of radiation induced grain boundary segregation in irradiation assisted stress corrosion cracking[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2004, 41(5): 27-31.
- [13] AZEVEDO C R F. Selection of fuel cladding material for nuclear fission reactors[J]. Engineering Failure Analysis, 2011, 18(8): 1943-1962.
- [14] SEKIO Y, YAMASHITA S, SAKAGUCHI N, et al. Effect of additional minor elements on accumulation behavior of point defects under electron irradiation in austenitic stainless steels[J]. Materials Transactions, 2014, 55(3): 438-442.
- [15] YANG Z, SAKAGUCHI N, WATANABE S, et al. Dislocation loop formation and growth under in situ laser and/or electron irradiation [J/OL]. Scientific Reports, (2011-01-10)[2016-11-22]. <http://www.nature.com/articles/srep00190>.
- [16] WAS G S, WHARRY J P, FRISBIE B, et al. Assessment of radiation-induced segregation mechanisms in austenitic and ferritic-martensitic alloys[J]. Journal of Nuclear Materials, 2011, 411(1/2/3): 41-50.
- [17] YANG Z, WATANABE S, KATO T. The irradiation effect of a simultaneous laser and electron dual-beam on void formation[J/OL]. Scientific Reports, (2013-03-16)[2016-11-22]. <http://www.nature.com/articles/srep01201>.
- [18] YANG Z, WATANABE S. Dislocation loop formation under various irradiations of laser and/or electron beams[J]. Acta Materialia, 2013, 61(8): 2966-2972.
- [19] SEKIO Y, YAMASHITA S, SAKAGUCHI N, et al. Void denuded zone formation for Fe-15Cr-15Ni steel and PNC316 stainless steel under neutron and electron irradiations[J]. Journal of Nuclear Materials, 2015, 458: 355-360.
- [20] YOSHIE T, CAO X Z, SATO K, et al. Point defect processes during incubation period of void growth in austenitic stainless steels, Ti-modified 316SS[J]. Journal of Nuclear Materials, 2011, 417(1/2/3): 968-971.
- [21] YOSHIE T, SATO K, CAO X, et al. Defect structures before steady-state void growth in austenitic stainless steels[J]. Journal of Nuclear Materials, 2012, 429(1/2/3): 185-189.