



## ОБРАТИМАЯ ОТПУСКНАЯ ХРУПКОСТЬ СВАРНЫХ СОЕДИНЕНИЙ КОРПУСОВ РЕАКТОРОВ ТИПА ВВЭР

О. Г. КАСАТКИН, д-р техн. наук (Ин-т электросварки им. Е. О. Патона НАН Украины)

Основной причиной ускоренного охрупчивания сварных соединений корпуса ядерного реактора в начальные периоды их эксплуатации является обратимая отпускная хрупкость, вызываемая повышенной концентрацией диффузионно-подвижных примесей, особенно фосфора. Радиационные дефекты кристаллической решетки, создаваемые потоком нейтронов, являются высокоэнергетическими ловушками и снижают концентрацию диффузионно-подвижных примесей. При увеличении флюенса быстрых нейтронов возрастает плотность дефектов кристаллической решетки, которые способствуют снижению концентрации примесей на границах зерен и уменьшению отпускной хрупкости.

*Ключевые слова:* корпус реактора, сварные соединения, диффузионное перемещение фосфора, обратимая отпускная хрупкость, радиационные дефекты, критическая температура хрупкости

В настоящее время основу атомной энергетики России и Украины составляют водо-водяные энергетические реакторы типа ВВЭР-440 и ВВЭР-1000, имеющие мощность соответственно 440 и 1000 МВт. Одной из наиболее ответственных частей оборудования АЭС является корпус ядерного реактора (КР), изготовленный из кованных цилиндрических обечаек и днища, которые свариваются под флюсом круговыми швами. Для производства КР ВВЭР-440 используется сталь 15ХЗМФА, а для КР ВВЭР-1000 — сталь 15Х2НМФА. Корпус ВВЭР-1000 имеет внутреннее аустенитное покрытие.

В случае аварийной остановки реактора и заполнения его холодной водой (при термошоке) на КР воздействуют значительные нагрузки. Поэтому его металл должен обеспечивать достаточно высокую сопротивляемость развитию возможной (обычно постулируемой) трещины при термошоке. Состояние металла КР главным образом оценивается критической температурой хрупкости  $T_K$ , при которой обеспечивается заданный уровень трещиностойкости.

Как показали исследования, ресурс КР ограничивается свойствами сварных соединений, которые более склонны к охрупчиванию, чем основной металл, в частности, из-за повышенной концентрации в металле шва фосфора (ВВЭР-440) или никеля (ВВЭР-1000).

Характерными условиями работы активной зоны КР являются наличие нейтронного облучения и длительного (сотни тысяч часов) нагрева до 300 °С. Основной механизм охрупчивания металла КР и сварных швов определяется накоплением радиационных повреждений кристаллической решетки под действием потока нейтронов. Еще

одним серьезным фактором, способствующим охрупчиванию, является повышенная концентрация примесей, особенно фосфора. Вредное влияние примесей обнаружено при исследовании образцов-свидетелей. Исследования показали, что КР, и особенно их сварные соединения, в первые годы эксплуатации охрупчиваются значительно быстрее, чем это можно было ожидать, за счет действия нейтронного облучения.

Целью настоящей работы является оценка влияния радиационных дефектов, образующихся в металле стенки корпуса в процессе работы реактора, на характер диффузионного перераспределения фосфора.

Рабочая температура КР, а также дополнительная энергия, выделяемая за счет гамма-облучения, оказываются достаточными для возникновения диффузионной подвижности фосфора, являющегося элементом внедрения. Общая энергия системы Fe-P уменьшается, когда атомы фосфора находятся в дефектах кристаллической решетки и на границах зерен, которые становятся ловушками для этих элементов. Границы зерен отличаются более высокой свободной энергией, чем отдельные дефекты типа вакансий. Процесс обогащения границ зерен фосфором в изотермических условиях продолжается до наступления динамического равновесия. При этом концентрация фосфора в очень тонкой зоне (5...10 атомных слоев) может в десятки раз превосходить среднее значение. Охрупчивающий отпуск не вызывает никаких структурных изменений в металле шва. Толщина адсорбционного слоя настолько мала, что изменение в нем сопротивления пластической деформации существенного значения может не иметь. Более важным, по-видимому, является снижение поверхностной энергии при образовании трещины по границам зерен. При этом разрушение обычно приобретает межзеренный характер, т. е. происходит главным образом по границам исходных аустенитных зерен. В результате не

только повышается  $T_K$ , но и снижается сопротивление усталостному разрушению, межкристаллитной коррозии и растрескиванию. Степень охрупчивания, характеризуемая значением  $\Delta T_K$ , оказывается пропорциональной концентрации примеси на границах.

При повышении температуры металла уменьшается энергия связи атомов фосфора с ловушками и равновесие устанавливается при меньших уровнях его сегрегации на границах зерен. При нагреве до температуры высокого отпуска почти весь фосфор переходит в кристаллическую решетку. При быстром охлаждении это состояние фиксируется и отпускная хрупкость исчезает, а при медленном — возникает вновь. В металловедении это явление называют обратимой отпускной хрупкостью [1]. Наибольшую склонность к хрупкости такого типа имеют легированные стали обычной чистоты.

Зависимость относительной равновесной концентрации фосфора на границах зерен  $P_r$  от температуры приведена на рис. 1. Здесь  $P_d$  — концентрация диффузионно-подвижного фосфора в кристаллической решетке (часть его может находиться, например, в неметаллических включениях, порах и других высокоэнергетических ловушках и не участвовать в процессе диффузии). Отношение  $P_r/P_d$  увеличивается по мере снижения температуры. При более низких температурах подвижность фосфора уменьшается и процесс сегрегации прекращается.

Диффузионная подвижность атомов фосфора в кристаллической решетке при  $T \sim 300^\circ\text{C}$  невелика. По данным НИЦ ХФТИ и РИЦ «Курчатовский институт», процесс «теплого старения» корпусных сталей продолжается около 20 тыс. ч [2]. Но учитывая, что длительность эксплуатации КР составляет сотни тысяч часов, процесс сегрегации фосфора на границах зерен может развиваться практически до равновесного состояния.

Никель вводится в шов для снижения критической температуры хрупкости металла в исходном состоянии. Однако легирование никелем повышает диффузионную подвижность фосфора в кристаллической решетке и в определенной степени увеличивает значения  $P_d$ . Возможно, это связано с изменением плотности дефектов типа вакансий. В результате при заданной температуре концентрация фосфора на границах зерен увеличивается.

При низком (до 0,003 мас. %) содержании фосфора повышение содержания никеля с 1 до 3 мас. % склонность стали к отпускной хрупкости практически не усиливает, тогда как при 0,01 мас. % Р такое же изменение содержания никеля обеспечивает достаточно интенсивную диффузию фосфора для протекания процесса сегрегации, при этом степень охрупчивания возрастает [1]. Равновесная концентрация фосфора на границах зерен повышается с увеличением содержания фосфора и никеля. Ра-

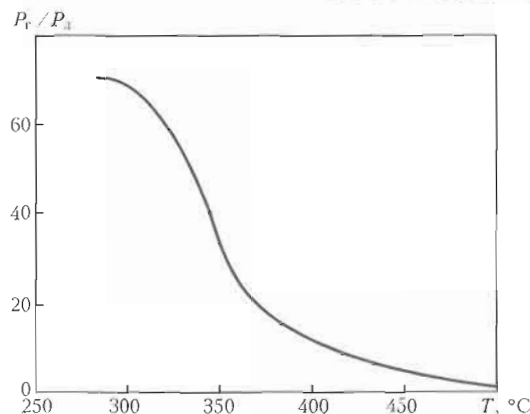


Рис. 1. Зависимость равновесной концентрации фосфора на границах зерен в металле шва от температуры

бочая температура КР  $T = 300^\circ\text{C}$  способствует максимальной сегрегации фосфора (рис. 1).

При изготовлении КР используется сварка под флюсом. Процесс сегрегации фосфора на границах зерен в металле шва развивается сильнее, чем в основном металле. Это связано, как правило, с укрупнением аустенитных зерен в металле шва и использованием недостаточно чистых сварочных материалов. Явления обратимой отпускной хрупкости не учитывались в должной мере при создании технологии сварки КР, особенно типа ВВЭР-440/230. В металле швов этих КР содержится 0,03...0,05 мас. % Р, что приводит к быстрому росту  $T_K$ . Следует отметить, что, кроме фосфора, вредными примесями являются сурьма, мышьяк и олово.

При работе реактора активная зона корпуса облучается мощным потоком нейтронов. Радиационные дефекты, возникающие в кристаллической решетке под действием быстрых нейтронов, могут существенно изменить кинетику сегрегации фосфора. Указанные дефекты являются ловушками с достаточно высокой энергией (для крупных дефектов уровень энергии может приближаться к энергии свободной поверхности). Захватывая отдельные атомы, ловушки снижают массовую долю диффузионно-подвижного фосфора [3].

Размеры дефектов зависят от энергетического спектра нейтронного потока: чем выше энергия нейтрона, тем больше размер дефекта, образующегося в кристаллической решетке. Исследования металла сварного шва трепана, вырезанного из корпуса выведенного из эксплуатации, реактора ВВЭР-440 блока № 2 Нововоронежской АЭС, показали, что дефекты имеют вид дисков толщиной около 1 нм и диаметром около 10 нм (рис. 2), их плотность составляет  $\lambda \sim 7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  [4]. Химический состав этих включений не был достоверно определен.

Исходя из указанных выше размеров дискообразных включений можно приблизительно оценить относительное значение объема дефектов — около 0,0055, т. е. суммарный объем радиацион-

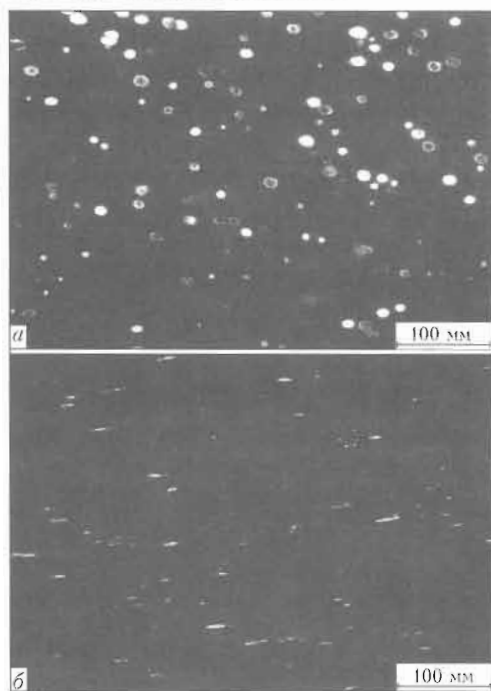


Рис. 2. Вид спереди (а) и сбоку (б) дискообразных включений в образце облученной корпусной стали [4]

ных дефектов равен приблизительно 0,5 % объема кристалла. Исходя из тех же размеров можно условно оценить суммарную площадь поверхностей включений на единицу объема кристалла

$$S_v \approx 11 \cdot 10^4 \text{ см}^2/\text{см}^3,$$

что значительно превышает общую площадь границ зерен.

В целом кинетика диффузионного процесса перераспределения фосфора при облучении стали нейтронным потоком выглядит следующим образом. Массовая доля диффузионно-подвижного фосфора и соответственно скорость охрупчивания стали за счет сегрегации фосфора на границах зерен максимальны на начальных этапах эксплуатации реактора и снижаются по мере увеличения плотности радиационных дефектов кристаллической решетки, являющихся ловушками для атомов фосфора. По мере увеличения флюенса нейтронного потока массовая доля диффузионно-подвижного фосфора уменьшается настолько, что по условиям динамического равновесия может начаться обратный процесс — отток фосфора от границ зерен в кристаллическую решетку. Чувствительность металла к отпускной хрупкости при этом снижается.

Reversible temper brittleness caused by an increased concentration of diffusible impurities, and phosphorus in particular, is the main reason of accelerated embrittlement of welded joints on a nuclear reactor body in the initial period of operation. Radiation crystalline lattice defects caused by a fluence of neutrons serve as high-energy traps and decrease the concentration of the diffusible impurities. Increase in the fluence of fast neutrons leads to a growth of density of the crystalline lattice defects, which promote decrease in the concentration of the impurities at grain boundaries, as well as decrease in temper brittleness.

Анализ образцов металла шва КР энергоблока № 1 Козлодуйской АЭС показал, что в металле активной зоны по толщине стенки КР фосфор распределяется неравномерно [5]. Максимальная концентрация фосфора имела место в металле внутренней поверхности стенки, а минимальная — вблизи наружной. Аналогичные явления обнаружены у упомянутого выше трепана, вырезанного из КР Нововоронежской АЭС. Кроме того, ударная вязкость металла шва на внутренней стенке КР оказалась выше, чем на наружной. Это хорошо согласуется с описанными выше явлениями обратимой отпускной хрупкости. Металл стенки КР около ее внутренней поверхности подвержен наиболее интенсивному воздействию нейтронного потока, массовая доля фосфора в радиационных дефектах кристаллической решетки максимальна, а диффузионно-подвижного фосфора минимальна. В связи с этим явления обратимой отпускной хрупкости у внутренней поверхности стенки КР проявляются слабее.

Таким образом, обратимая отпускная хрупкость (особенно стадия быстрого роста критической температуры хрупкости) развивается на начальном этапе эксплуатации реактора и в дальнейшем уменьшается в металле активной зоны. Учет процессов обратимой отпускной хрупкости дает возможность более достоверно оценить текущее состояние металла КР и динамику деградации его свойств в активной зоне.

1. Курдюмов Г. В., Утевский Л. М., Энтин Р. И. Превращение аустенита при охлаждении и отпуск закаленной стали // *Металловедение и терм. обработка стали*. — М.: Металлургия, 1983. — С. 111–177.
2. Проблема радиационного охрупчивания корпусов реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 и пути ее решения / В. Ф. Зеленский, И. М. Неклюдов, Л. С. Ожигов и др. // *Вопр. атомной науки и техники. Сер. Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение*. — 1997. — Вып. 1(65)/2(66). — С. 119–122.
3. Касаткин О. Г. Механизмы охрупчивания сварных соединений корпусов реакторов типа ВВЭР под действием примесей // *Тр. 5-й Междунар. конф. «Материаловедческие проблемы при проектировании, изготовлении и эксплуатации оборудования АЭС»*. — В 4 т. — Т. 2. — С.-Пб.: Прометей, 1998. — С. 168–176.
4. Assessment of relative contributions from different mechanisms to radiation embrittlement of reactor pressure vessel steels / В. А. Gurovich, Е. А. Kuleshova, Zu. А. Nikolaev, Za. I. Shtrombakh // *J. Nucl. Mater.* — 1997. — № 246. — P. 91–120.
5. Phosphorous content and distribution in the metal of RPV weld 4 / Т. Kamenova, S. Vodenicharov, Е. Momchilova, V. Gaïdarova // *Rep. of a workshop on Kozloduy unit 1 reactor pressure vessel integrity, Sofia, Bulgaria, May 21–23, 1997*. — Sofia: International Atomic Energy Agency, 1997. — P. 1–13.