

## РАДИАЦИОННОЕ ОХРУПЧИВАНИЕ КОРПУСНЫХ СТАЛЕЙ УКРАИНСКИХ АЭС

*И.Н.Вишнеvский, Э.У.Гриник, Л.И.Чирко, О.В.Дрогаев, В.Н.Ревка,  
Ж.Фокт\*,Р.Бертран\*\*, К.Тролля\*\**

*Научный центр "Институт ядерных исследований"НАН Украины, г.Киев*

*\*Universit  de Lille I, Франция*

*\*\*Electricit  de France, Франция*

Измерение радиационно-стимулированного охрупчивания, выполняемое в рамках программы образцов-свидетелей, не только определяет остаточную жизнь данного корпуса, но также приводит к более общим заключениям. В работе представлены и обсуждены результаты испытаний образцов-свидетелей основного металла и металла сварного шва после 5 лет облучения в Украинских АЭС. Сравнение с другими данными приводит к анализу роли: 1) химического состава, 2) микроструктуры и 3) условий облучения (плотность потока, флюенс, ...). Анализ результатов испытаний на растяжение показали, что при одинаковом флюенсе нейтронов наблюдается большее упрочнение металла сварного шва по сравнению с основным металлом. Также обнаружено влияние плотности потока нейтронов на физико-механические характеристики материалов. При одинаковом флюенсе более низкий поток приводит к большему упрочнению и, следовательно, к большему охрупчиванию.

В западных странах, так же как и в восточных, данные, получаемые по Программе образцов-свидетелей (ОС) реакторов с корпусами под давлением [1 - 4], вносят важный вклад в экспертизу безопасной работы ядерных реакторов. Анализ накопленных результатов представляет интерес, с одной стороны, для надзорных органов с точки зрения ядерной безопасности (предсказание закона охрупчивания), а с другой стороны, для разработчиков, ведущих поиск новых марок сталей с высоким сопротивлением радиационному охрупчиванию, что необходимо для реакторов нового поколения. Поэтому должны быть точно определены роль легирующих элементов и микроструктуры, а также влияние условий облучения на радиационно-стимулированные микроструктурные механизмы.

В Украине находятся в эксплуатации 11 энергоблоков с ВВЭР-1000, еще два блока находятся в стадии строительства. Это больше, чем во всех остальных странах СНГ, включая страну-изготовитель корпусов реакторов Россию.

На Украине также, как и во всех странах, строящих АЭС с корпусными реакторами, осуществляются программы контроля состояния материалов корпусов с помощью образцов-свидетелей, изготовленных из материалов того же корпуса, который контролируется. Результаты испытаний образцов-свидетелей являются основанием для установления фактических изменений металла корпусов-свидетелей в условиях эксплуатации АЭС и должны использоваться для прогнозирования ресурса работы корпусов-реакторов (КР), с точки зрения сопротивления хрупкому разрушению. Все нормативные документы на ОС были разработаны еще в период существования СССР. Поэтому в настоящее время на Украине так же, как и в России проводится подготовительная работа по модернизации существующей программы образцов-свидетелей.

В отличие от западных программ образцов-свидетелей, на Украине, так же как и в России исполь-

зуется двухэтажная установка образцов-свидетелей. Нейтронный поток, падающий на образцы верхнего ряда, приблизительно равен нейтронному потоку, падающему на внутреннюю поверхность корпуса реактора против центра активной зоны. Образцы нижнего ряда воспринимают несколько больший (примерно в 2,5 раза) поток быстрых нейтронов и предназначены для прогнозирования состояния металла корпуса реактора на ближайшие 5 или 10 лет. Кроме облучаемых образцов под крышкой корпуса реактора находятся температурные образцы. Они предназначены для отделения изменений свойств металла, связанных с температурным старением, от изменений, связанных с действием радиации (рис.1). Для первого срока освидетельствования образцов-свидетелей изменение свойств температурных образцов зачастую очень мало.

Корпуса реакторов типа ВВЭР-1000 изготавливаются из стали перлитного класса типа 15Х2НМФА-А. Концентрация наиболее опасных с точки зрения радиационного охрупчивания элементов – фосфора и меди ограничена: фосфора - пределом 0,010 %, меди - 0,1 %, а сумма концентраций фосфора, сурьмы и олова - уровнем 0,013 %. С целью повышения технологичности при сварке обечаек в сталь добавлен ванадий (не более 0,1%), а также никель как элемент, упрочняющий феррит одновременно с повышением его вязкости. По некоторым технологическим причинам содержание никеля в металле сварных соединений корпусов реакторов 7 энергоблоков АЭС Украины превышает 1,3 % (уровень, до которого были проведены тщательные исследования разработчиками и установлено корреляционное уравнение), а именно: Южно-Украинская – 2 и 3 энергоблоки, Ровенская – 3 блок, Запорожская – 3, 4 и 5 блоки, Хмельницкая – 1 энергоблок. Последующие исследования радиационного охрупчивания показали, что для материалов с повышенным содержанием никеля наблюдаются значительные отличия в дозовой зависимости и оказалось, что нормативное

корреляционное уравнение не работает.

Многочисленные экспериментальные данные показывают, что никель значительно увеличивает чувствительность корпусной стали к радиационному охрупчиванию (рис.2 [5]).

В нормативных документах, действующих в СНГ, установлено, что при содержании никеля  $\leq 1,3$  % степень радиационного охрупчивания оценивается по формуле:

$$\Delta T_F = A_f F^{1/3} \quad (1),$$

где флюенс  $F$  выражен в единицах  $10^{18}$  нейтр./см<sup>2</sup> ( $E \geq 0,5$  МэВ), а коэффициент радиационного охрупчивания  $A_f$  составляет:

для основного металла  $A_f = 23$ ,  $T_{ко} < -25^{\circ}\text{C}$ ;  
 для металла сварного шва  $A_f = 20$ ,  $T_{ко} < 0^{\circ}\text{C}$ .

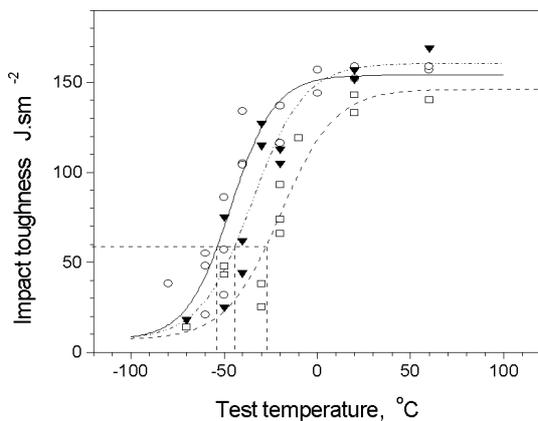


Рис. 1. Температурная зависимость ударной вязкости по результатам испытаний образцов-свидетелей металла сварного шва ( $P=0,005\%$ ,  $\text{Cu}-0,06\%$ ,  $\text{Ni}-1,72\%$ ) после 5 лет облучения: необлученные образцы ( $\circ$ ), термические образцы ( $\blacktriangledown$ ) и облученные образцы ( $\square$ ) (нижний ряд контейнерной сборки)

Экспериментальные результаты исследований образцов-свидетелей 1-го срока освидетельствования (после 5 лет эксплуатации) корпусов реакторов типа ВВЭР-1000 украинских АЭС демонстрируют значительный разброс сдвига температуры хрупко-вязкого перехода  $\Delta T_F$ . Поскольку в корпусных сталях украинских АЭС содержание меди и фосфора весьма низкое и для всех блоков очень близкое, а концентрация никеля существенно различается, то эффект смещения температуры хрупко-вязкого перехода под действием облучения можно связать с разным содержанием никеля в стали. Более наглядно эти данные выглядят на рис.3 и 4. Монотонное увеличение радиационного охрупчивания с концентрацией никеля наблюдается на образцах сварного шва в противоположность основному металлу. Пересечение кривых радиационного охрупчивания для основного металла свидетельствует о том, что при концентрации никеля более 1,2 % процесс охрупчивания в основном металле при меньшей плотности потока нейтронов идет интенсивнее.

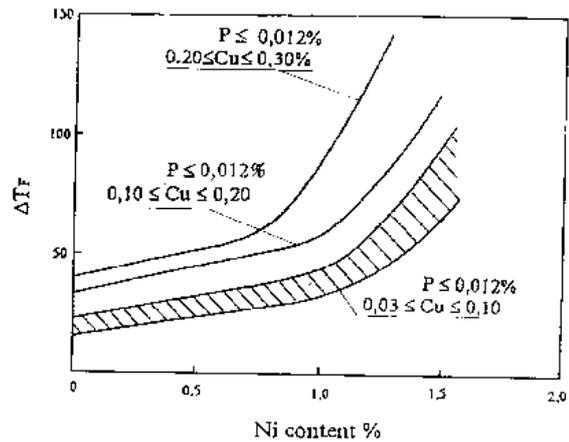


Рис.2 Влияние содержания никеля на радиационное охрупчивание стали 15X2MФА,  $F = 5 \cdot 10^{23}$  нейтр.м<sup>-2</sup> ( $E \geq 0,5$ МэВ),  $T_{обл} = 270^{\circ}\text{C}$  [5].

Это подтверждает анализ сдвига температуры хрупко-вязкого перехода, полученного для образцов-свидетелей после 5 лет облучения на различных энергоблоках украинских АЭС (рис.5). Экспериментальная зависимость, показанная на рис.5, позволяет оценить влияние плотности потока нейтронов на скорость радиационного охрупчивания.

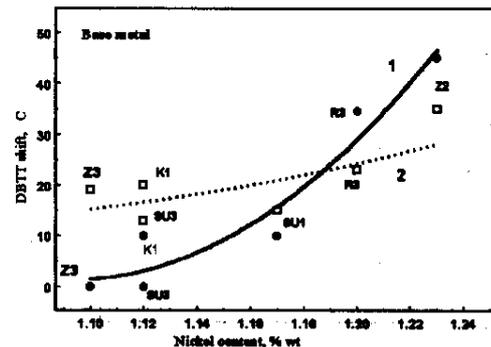


Рис.3. Зависимость сдвига температуры хрупко-вязкого перехода от содержания никеля для ОС основного металла корпусов реакторов украинских АЭС после 5 лет облучения: 1( $\bullet$ ) - верхний ряд контейнерной сборки  $F = (0,3-0,54) \cdot 10^{19}$  нейтр/см<sup>2</sup>; 2( $\square$ ) - нижний ряд  $F = (0,57-1,2) \cdot 10^{19}$  нейтр/см<sup>2</sup>

Аналогичный эффект влияния флукса на предел текучести был впервые обнаружен нами при исследовании образцов-свидетелей 1 блока ХАЭС после 5 и 10 лет облучения (рис.6 [6]). Двухэтажная схема расположения образцов-свидетелей в контейнерных сборках на двух этажах позволяет провести исследование влияния плотности потока нейтронов на изменение физико-механических характеристик металла корпуса.

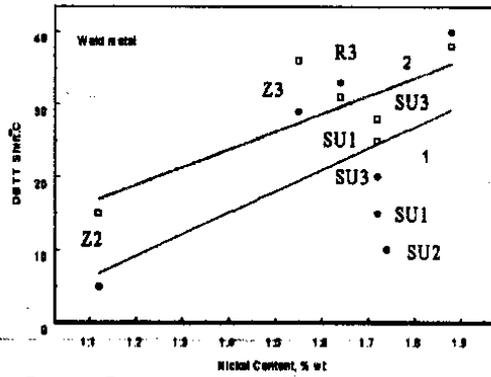


Рис.4. Зависимость  $\Delta T_F$  от содержания никеля для ОС металла сварного шва корпусов реакторов украинских АЭС после 5 лет облучения: 1(●) - верхний ряд контейнерной сборки  $F = (0, 2-0, 5) \cdot 10^{19}$  нейтр./см<sup>2</sup>; 2(□) - нижний ряд  $F = (0, 4-1, 1) \cdot 10^{19}$  нейтр./см<sup>2</sup>

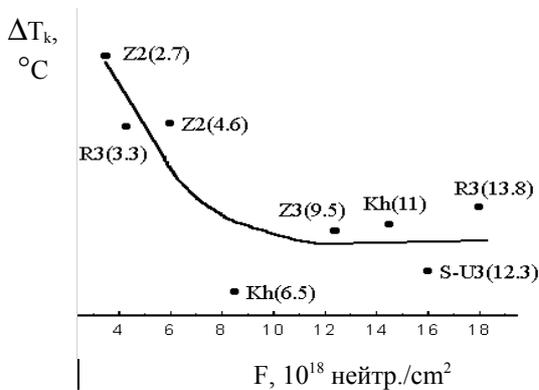
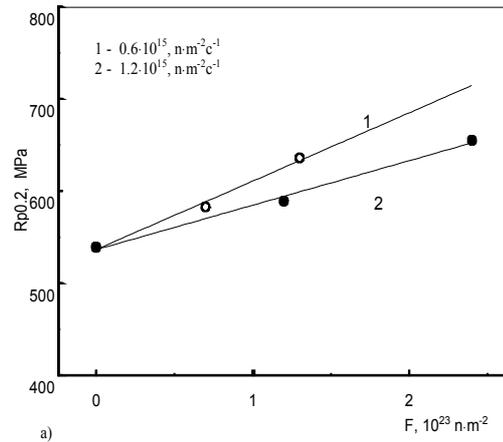


Рис.5. Сдвиг температуры хрупковязкого перехода для основного металла ОС украинских корпусов реакторов ВВЭР-1000 после 5 лет облучения. В скобках приведены значения плотностей потока нейтронов в единицах  $10^{10}$  нейтр./см<sup>2</sup> с.

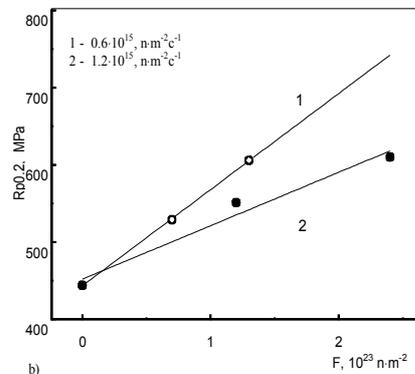
Как следует из рис.6, при одинаковом флюенсе нейтронов величина радиационного упрочнения больше при меньшем флаксе. Эффект наблюдается как для основного металла, так и для металла сварного шва. Результаты испытаний на растяжение показали, что увеличение предела текучести образцов-свидетелей 3-его блока Южно-Украинской АЭС после набора флюенса нейтронов  $\sim 1.2 \cdot 10^{19}$  нейтр./см<sup>2</sup> ( $E \geq 0,5$  МэВ) составляет: для основного металла  $\sim 9\%$ , а для металла сварного шва  $\sim 16\%$  (содержание никеля в шве 1.72%, фосфора 0,005%, меди 0,06%). Для образцов-свидетелей 1-го блока Хмельницкой АЭС после такого же флюенса увеличение предела текучести составляет: для основного металла  $\sim 10\%$ , а для металла сварного шва  $\sim 20\%$  (содержание никеля в сварном шве 1.88%, фосфора 0,006%, меди 0,02%).

Дальнейшее повышение флюенса нейтронов на 1-м блоке ХАЭС до значений  $\sim 2.4 \cdot 10^{19}$  нейтр./см<sup>2</sup>, что соответствует 20 годам эксплуатации, приводит к таким значениям радиационного упрочнения: для основного металла  $\sim 13\%$ , а для металла сварного

шва  $\sim 30\%$ .



a)



b)

Рис.6. Зависимость предела текучести  $Rp_{0.2}$  от флюенса нейтронов при различной плотности нейтронного потока для основного металла (а) и для металла сварного шва (б) при комнатной температуре [6].

Таким образом, экспериментально установлено, что чем больше никеля содержится в металле, тем радиационное упрочнение больше, но в интервале флюенсов нейтронов ( $E \geq 0,5$  МэВ)  $(1.2 \dots 2.4) \cdot 10^{19}$  нейтр./см<sup>2</sup> эффект влияния никеля снижается.

Как правило, охрупчивание корпусной стали связывают с радиационными повреждениями в виде кластеров, обогащенных атомами меди или фосфора. Поэтому увеличение предела текучести и сдвига температуры перехода с увеличением концентрации никеля можно было бы связать с более быстрым формированием таких кластеров. Необходимо детальное изучение структуры таких образцов для установления роли никеля в процессе радиационного охрупчивания.

Согласно модели [7] механизм влияния фосфора и меди связан с образованием мелкодисперсных, менее 3 нм, преципитатов или кластеров, обогащенных фосфором или медью в зависимости от типа кластеров, которые приводят к торможению подвижных дислокаций. Никель также входит в состав этих кластеров. Эффект влияния никеля в соответствии с моделью [7], можно объяснить тем, что никель при-

водит, с одной стороны, к уменьшению размеров кластеров, обогащенных медью или фосфором, а с другой стороны, к увеличению их количества. Авторы работы считают, что никель замедляет процесс обеднения матрицы стали атомами меди и фосфора, а это приводит к отсутствию насыщения радиационного охрупчивания даже при больших флюенсах нейтронов. В рамках этой модели эффект влияния плотности потока нейтронов можно объяснить так: при меньшей плотности потока нейтронов образуются кластеры (на основе атомов фосфора и меди с включением атомов никеля) меньших размеров, но большей плотности потока их размеры больше из-за большей диффузионной подвижности примесных и легирующих атомов, а количество меньше.

Учитывая вышеупомянутые проблемы, необходимо тщательно контролировать радиационно-стимулированные изменения физико-механических свойств корпусных сталей в рамках программы образцов-свидетелей, а также проводить специальные исследования. Полученные при этом данные дадут возможность подтвердить допущения, заложенные в расчет хрупкой прочности корпусной стали, а также уточнить закономерности радиационного охрупчивания этих материалов, что приведет к более точным определениям остаточного ресурса безопасной работы корпусов реакторов.

## ЛИТЕРАТУРА

1. *Nuclear research and development in russia. Nuclear Engineering and Design* /Guest Editor A. Gagarinski, 1997, v. 173, p.1-367.
2. Langer, A. Ballesteros, M. G. Horsten and A. M. Kryukov. Results of irradiationsurveillance programs of the Netherlands, Spain, the Russian federation and Germany and the comparison with the predictions according to the national codes// *Proceedings of the International Symposium, French Nuclear Energy Society*, 1998, v. 1, p. 11.
3. A.M.Kkryukov, Yu.A.Nikolaev, T.Plaman and P.A.-Platonov. Basic results of the Russian wwer-1000 surveillance program// *Nuclear Engineering and Design*,. 1997, v.173, p.333-339
4. L.M.Davies. A comparison of western and eastern nuclear reactor pressure vessel steels// *International Journal of Pressure Vessel and Piping*. 1999, v. 76, p. 163-208.
5. I.V.Gorynin. Structural for NPP Reactor Pressure Vessels in Rusia// *Proceedings of the International Conference on Material Issues in Design, Manufacturing and Operation of Nuclear Power Plants Equipment, St.Petersburg - Puskin, 7-14 June 1998*, v.1, p.5 - 30.
6. E.Grynik, L.Chyrko, V.Revka, O.Drogayev, J.Foct, R.Bertrand, C.Trollat, J.P.Massoud Influence of Nickel on irradiation embrittlement of Ukrainian NPP vessel steel// *Mat.of Specialists Meeting on "Irradiation Embrittlement and Mitigation"*, MADRID, 26-29 APRIL 1999.
7. M.M.Ghoneim, F.H.Hammad. Pressure vessel steels: Influence of chemical composition on irradiation sensitivity// *Int.J.Ves.&Piping*, 1997, v.74, p.189-198.