

## АНАЛИЗ ВЛИЯНИЯ ВЕЛИЧИНЫ ПЛОТНОСТИ ПОТОКОВ НЕЙТРОНОВ НА ОХРУПЧИВАНИЕ МАТЕРИАЛОВ РУ ВВЭР-440(230)

Ломакин С.С., Душкевич В.М., Носоров А.С., Рубцов В.С. (НТЦ ЯРБ)

В настоящее время РУ ВВЭР-440 (230) первого поколения эксплуатируются за пределом проектного срока службы.

Оценки степени охрупчивания конструкционных материалов этих реакторов (корпус – сталь 15Х2МФА, сталь опорных конструкций – Ст3) показали, что фактическое радиационное охрупчивание оказывается более значительным, чем проектное. По указанной причине, как известно, для снижения плотности потока нейтронов (флакса  $\phi$ ) и охрупчивания предпринимались отжиги корпусов, установки кассет-экранов и т.п.

В работе [1] для оценки влияния факса на охрупчивание корпусов РУ ВВЭР-440(230) использовали имеющиеся на то время немногочисленные данные с неочевидными погрешностями по сдвигу критической температуры хрупкости ( $\Delta T_k$ ) и плотности потока нейтронов.

Тем не менее, на основании этих и некоторых других данных, в работе [2] продемонстрирована зависимость  $\Delta T_k$  от  $\phi$ , то есть эффект факса.

В настоящее время с использованием новых [6] и уточненных прежних данных при строгой статистической обработке получена регрессионная зависимость  $\Delta T_k$  от  $\phi$  с оцененной погрешностью при доверительном уровне (95% для материала шва № 4 корпуса РУ ВВЭР-440(230) и материала опорной конструкции). При этом учтены механизмы влияния примесей в материалах на радиационное охрупчивание.

В соответствии с работой [3] принималось, что основной вклад в энергию взаимодействия “точечный дефект-примесь” вносит упругое взаимодействие, которое наблюдается только в том случае, когда имеется несоответствие размеров примеси и матричного атома. Для случая упругого дилатационного взаимодействия между двумя точечными дефектами дилатационный объем для вакансии лежит в области (0,25...0,5) атомных объемов. Если размер примеси превышает размер матричного атома, энергия связи “точечный дефект-примесь” положительна, и, следовательно, при образовании комплекса общая энергия кристалла уменьшается. Примеси, растворение которых приводит к положительному изменению параметра решетки матрицы, являются надразмерными (Cu, P, As, Sn, Sb). Если же размер матричного атома превышает размер атомов примеси, то при сближении примеси и вакансии общая энергия кристалла увеличивается. Соответственно, такие примеси, растворение которых приводит к отрицательному изменению параметра решетки матрицы, являются подразмерными (Ni, Co и Si).

В случае наличия надразмерных примесей существование комплекса “вакансия-примесь” энергетически более выгодно. При увеличении температуры вследствие повышения вероятности образования комплекса “вакансия-примесь” увеличивается растворимость надразмерной примеси.

При наличии подразмерных примесей существование комплекса “вакансия-примесь” невыгодно. При начальном увеличении температуры уменьшается свободная энергия и, следовательно, растворимость примеси увеличивается. При дальнейшем же увеличении температуры существенно возрастает концентрация вакансий и повышается вероятность взаимодействия примесей с вакансиями, что приводит к уменьшению равновесной растворимости подразмерных примесей.

Концентрация вакансий в материале под облучением при температуре, характерной для работы корпусов РУ ВВЭР-440 (230), на несколько порядков выше концентрации междоузлий. Следствием этого является то, что в условиях облучения растворимость примесных элементов в матрице  $\alpha$ -Fe соответствует растворимости при температуре, большей температуры облучения.

Сегрегационные процессы, зависящие от превышения растворимости примеси над равновесной, в условиях эксплуатации протекают по высокотемпературному типу. Как отмечено выше, предел растворимости примесей при облучении, в свою очередь, зависит от плотности потока нейтронов. При повышении плотности потока разность концентраций уменьшается для надразмерных примесей и, следовательно, уменьшается охрупчивание.

Стали с большим содержанием надразмерных примесей (P, As, Sn, Sb, 0,07-Cu) для одного и того же флюенса при повышении плотности потока нейтронов характеризуются понижением величины сдвига температуры хрупко-вязкого перехода. Однако, если концентрация этих примесей мала и они могут быть полностью растворены, то такие стали при повышении плотности потока характеризуются повышением  $\Delta T_k$ .

Аналогично получается, что с повышением плотности потока нейтронов сильно понижается растворимость подразмерных примесей в  $\alpha$ -Fe, увеличивается скорость выпадения вторых фаз и, следовательно, увеличивается охрупчивание, связанное с выпадением вторых фаз подразмерных примесей.

## Анализ зависимостей критической температуры хрупкости от плотности потока нейтронов для корпусных сталей и сталей опорных конструкций

### Корпусная сталь 15Х2МФА

При исследовании зависимости влияния плотности потока нейтронов от массового содержания примесей для сталей РУ ВВЭР-440 (230) выявлено [3], что существует некоторое граничное значение суммарного содержания в корпусных сталях надразмерных примесей  $\Sigma(P+Sb+As+0,07Cu)$ , которое находится в диапазоне от 0,06 до 0,084 % масс. В зависимости от этого значения исследованные стали можно разделить на две группы по влиянию изменения плотности потока нейтронов на скорость радиационного охрупчивания корпусных сталей. Для сталей с суммарным содержанием надразмерных примесей больше 0,08 % масс. увеличение плотности потока нейтронов уменьшает  $\Delta T_k$ , в то время как для других феррито-перлитных сталей высокой чистоты увеличение плотности потока нейтронов увеличивает скорость охрупчивания.

На рис. 1 представлена зависимость критической температуры хрупкости от плотности потока нейтронов ( $E > 0,5$  МэВ) для стали 15Х2МФА, полученная на основе построения регрессионной модели следующего вида:

$$\Delta T_f = [800(C_p + 0,07C_{Cu})(F/F_0)^{1/3}] 11,88(\lg(\varphi))^{-1}$$

где:  $\Delta T_f$  – сдвиг критической температуры хрупкости вследствие влияния нейтронного облучения;  $F$  – флюенс нейтронов с  $E > 0,5$  МэВ ( $n/cm^2$ );  $F_0$  – константа ( $10^{18} n/cm^2$ );  $C_p$  и  $C_{Cu}$  – концентрация фосфора и меди, соответственно.

Регрессионная кривая на рис.1 построена для флюенса  $5 \cdot 10^{19} n/cm^2$ , концентрация фосфора – 0,036 и концентрация меди – 0,13. Видно, что охрупчивание стали 15Х2МФА, массовое содержание надразмерных примесей в которой превышает пороговое значение, уменьшается при увеличении плотности потока нейтронов.

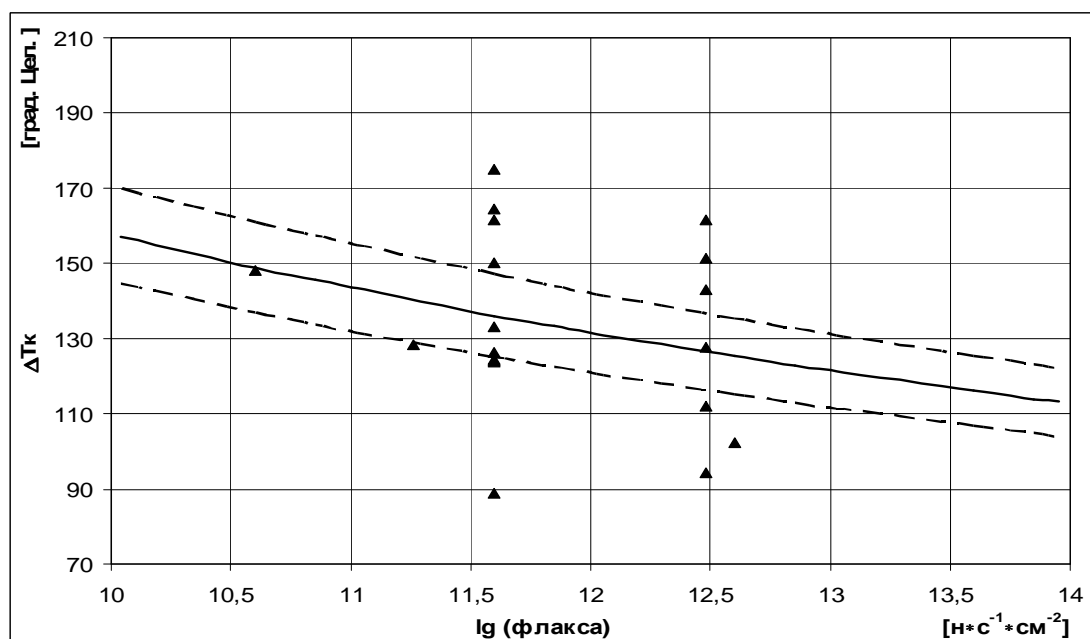


Рис. 1. Зависимость критической температуры хрупкости  $\Delta T_k$  от плотности потока нейтронов для материала шва (сталь 15Х2МФА):

— — линия регрессии; --- — 95% доверительный интервал для регрессионной кривой;  
▲ — экспериментальные точки

Для более чистых сталей, содержание надразмерных примесей в которых меньше граничного значения, зависимость  $\Delta T_k$  от  $\varphi$  имеет противоположный характер (рис. 2).

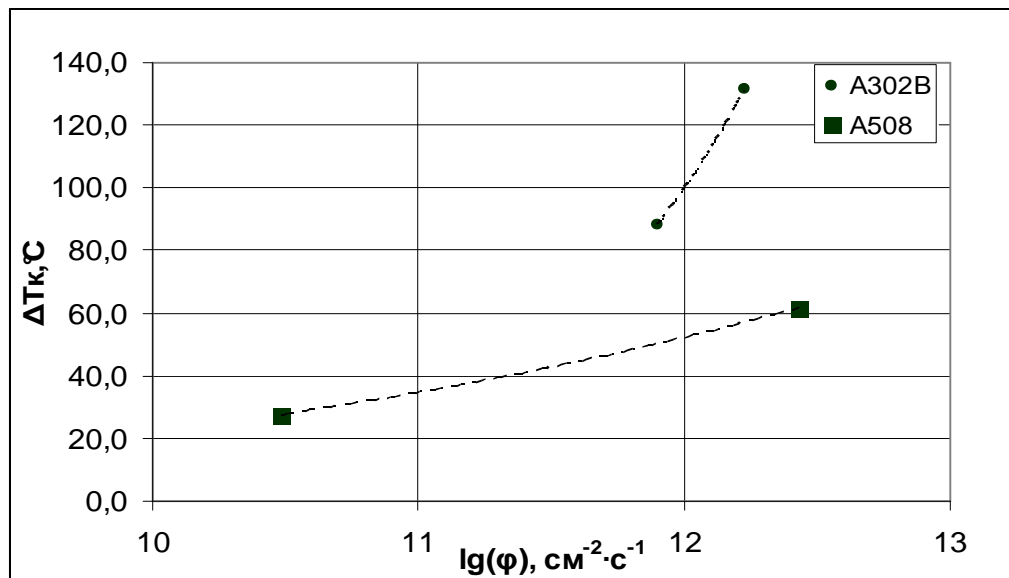


Рис. 2. Зависимость сдвига критической температуры хрупкости  $\Delta T_k$  от плотности потока нейтронов для сталей A302B и A508

### Материал опорных конструкций Ст3

При анализе имеющихся данных по Ст3 выявлено, что увеличение плотности потока нейтронов приводит к уменьшению скорости охрупчивания. На рис. 3 представлена зависимость критической температуры хрупкости от плотности потока нейтронов для аналоговой группы Ст3, в которую включены следующие марки сталей: Ст3, А106, 22К, ЧН13030, А212В. Это согласуется с данными по массовому содержанию надразмерных примесей в Ст3 и сталях аналоговой группы.

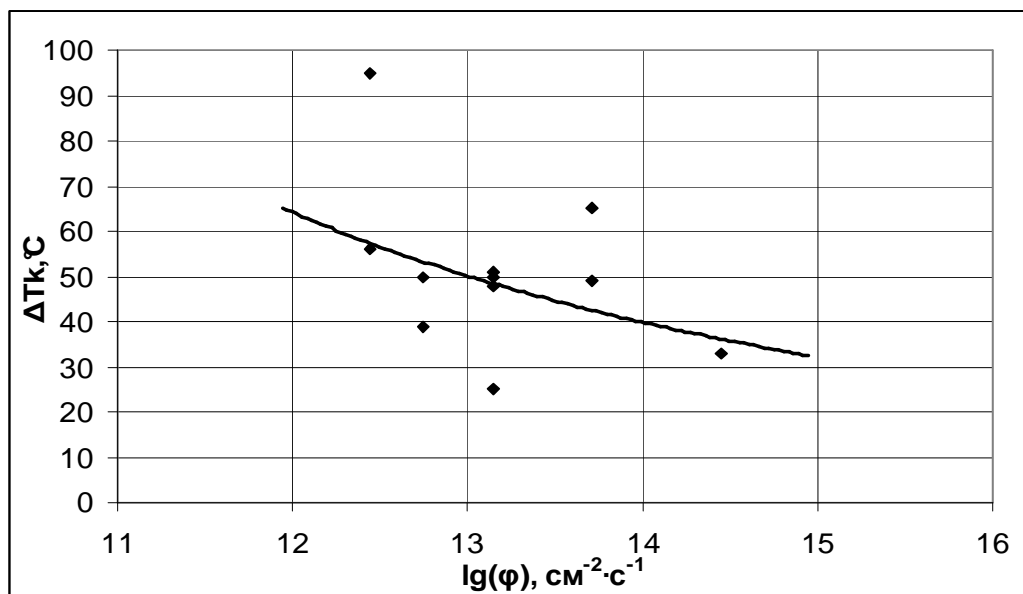


Рис. 3. Зависимость сдвига критической температуры хрупкости  $\Delta T_k$  от плотности потока нейтронов для Ст3

Для статической обработки данных по сдвигу  $\Delta T_k$  в группу сталей (Ст3 и др. – аналоговая группа НТЦ ЯРБ) отобраны данные для основного металла с близкими содержаниями по примесям и мелкозернистые. Отсутствие учёта зернистости углеродистых сталей приводит к заметному разбросу в используемых данных так же, как и различие по содержанию примесей.

Для созданной аналоговой группы основного металла используется зависимость НТЦ ЯРБ, которая не включает данные, относящиеся к материалу сварного шва, и имеет следующий вид:

$$\Delta T_k = A_f \sqrt[3]{\frac{F}{F_0}}, \text{ где } A_f = 1700 \cdot (\lg(\phi))^{-1.5}. \quad (2)$$

Полученная в результате статистической обработки дозовая зависимость, предложенная НТЦ ЯРБ для оценки радиационного охрупчивания ( $\Delta T_k$ ) по верхней границе 95%-ного точечного доверительного интервала с учетом флакса быстрых нейтронов имеет следующий вид:

$$\Delta T_k^{95\%} = A_F^{95\%} (F_n / F_0)^{1/3}, \quad (3)$$

где  $F_0 = 10^{18}$  н/см<sup>2</sup>;  $A_F^{95\%} = B + C / \lg \phi$ ;  $B = 17$ ;  $C = 319$ ;  $\phi$  при  $E > 0,5$  МэВ – в н/(см<sup>2</sup>с).

Дозовая зависимость, полученная в работе [5], имеет вид:

$$\Delta T_k^{95\%} = 177[1 - \exp(-DF_n \cdot 10^{-20})]^{1/2} + 34, \quad (4)$$

где  $D = 17,23 / [1,9 \lg \phi - 13,54]$  при  $E > 0,5$  МэВ.

Зависимость (4) получена для всего массива данных углеродистых сталей без ранжирования по составу примесей, зернистости и включает данные как для основного металла, так и для сварного шва.

По этой причине зависимость, полученная в работе [5], должна быть более консервативна, чем зависимость, предложенная НТЦ ЯРБ, что видно из полученного сравнения двух дозовых зависимостей при 95%-ном доверительном уровне верхней границы (рис. 4).

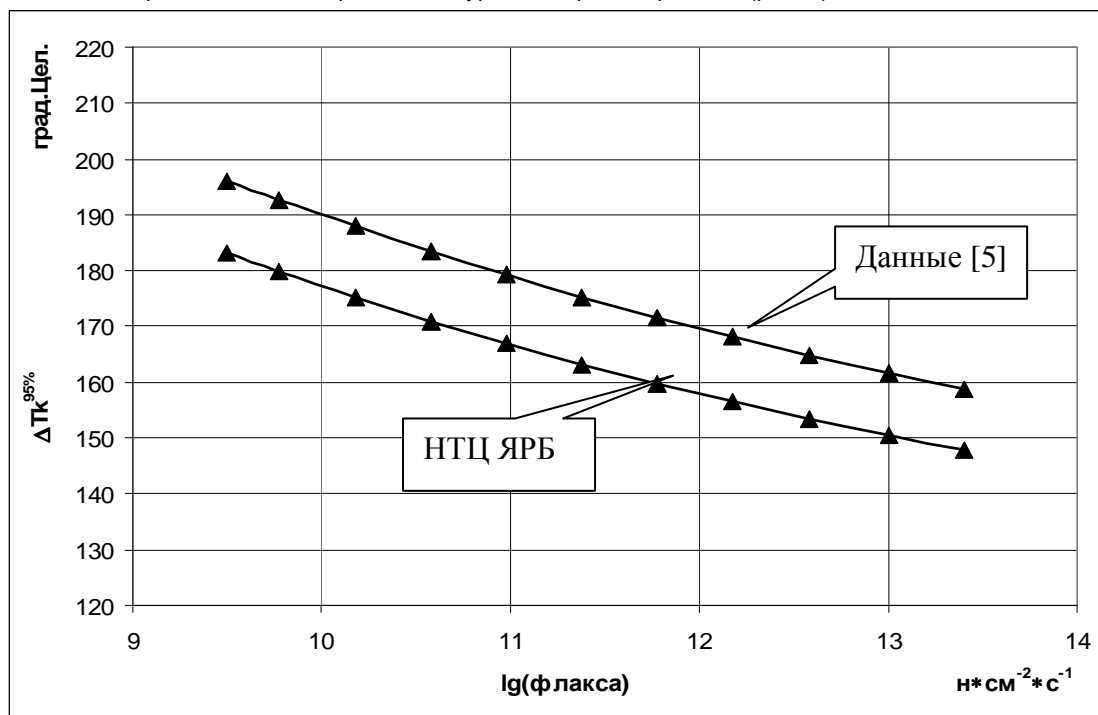


Рис. 4. Зависимость сдвига критической температуры хрупкости от плотности потока нейтронов по верхней границе доверительного интервала ( $\Delta T_k^{95\%}$ ) для 45-летнего срока эксплуатации опорной конструкции реактора 4-го блока НВАЭС

Данные, приведенные на рис. 4, получены независимо НТЦ ЯРБ и в работе [5] и достоверно демонстрируют наличие флакс-эффекта для углеродистой стали (Ст3), используемой в опорной конструкции РУ ВВЭР 440 (230).

#### Заключение

1. Статистическая обработка результатов измерений сдвига критической температуры хрупкости  $\Delta T_k$  показала, что для сталей РУ ВВЭР-440 (230) эффект флакса имеет место. Для сталей 15Х2МФА с надразмерными примесями, сумма которых более 0,084%, уменьшение плотности потока нейтронов приводит к увеличению  $\Delta T_k$  (низкопоточный флакс-эффект).

## Статьи

Для сталей с суммой надразмерных примесей менее 0,06% сдвиг критической температуры хрупкости  $\Delta T_k$  увеличивается с ростом плотности потока нейтронов, то есть эффект флакса проявляется и при увеличении плотности потока нейтронов.

Таким образом, приведенные результаты однозначно демонстрируют наличие эффекта флакса, характер которого зависит от количества и номенклатуры примесей в матричном составе сталей).

2. Сравнение данных до и после отжига [4] показывает, что эффект низкопоточного флакса после отжига по величине заметно уступает эффекту флакса на неотожженном материале 15X2МФА.

3. Проведенное сравнение дозовых зависимостей  $\Delta T_k$  от флакса, полученного в НТЦ ЯРБ, и данных [5] подтверждает наличие низкопоточного эффекта для стали Ст3. Сравнение показывает близость результатов и, в тоже время, подтверждает, что данные [5] являются более консервативными, но приемлемыми для оценки безопасности эксплуатации опорной конструкции ВВЭР-440.

4. Оцененный эффект увеличения охрупчивания углеродистых сталей при уровне флакса порядка  $10^9 \div 10^{10}$  н/см<sup>2</sup>с ( $E > 0,5$  МэВ) свидетельствует о необходимости внесения изменений в п.5.8.4.5 ПНАЭ Г-7-002-86 при уменьшении нижнего предела флюенса  $F_n$  (в формуле  $10^{22} \leq F_n \leq 3 \cdot 10^{24}$  н/м<sup>2</sup>).

## Литература

1. Reactor pressure vessel embrittlement, IAEA-TECDOC-659, July, 1992.
2. С.С. Ломакин. Анализ низкопоточного и низкотемпературного охрупчивания углеродистых сталей в составе конструкций реакторов АЭС. Вестник Госатомнадзора России, 2003 № 4.
3. Сидоренко О.Г., Светухин В.В., Суслов Д.Н., Голованов В.Н. Влияние изменения растворимости примесей при облучении на скорость охрупчивания феррито-перлитных сталей. ВАНТ 2005, № 5. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (88).
4. Ломакин С.С. К корректировке данных о радиационном охрупчивании материалов корпусов ВВЭР-440. Вестник Госатомнадзора России, 2002 № 2.
5. Никитенко М.П. Автореферат. Методология обоснования продления срока службы опорных конструкций реакторов АЭС с ВВЭР-440. Подольск, 2007 г.
6. Kryukov A., Chernobaeva A., Amaev A., Erak D., Platonov P., Shtrombakh Y., "Flux effect on radiation embrittlement of VVER-440 reactor pressure vessel materials", 18<sup>th</sup> international conference on structural mechanics in reactor technology, Deijing, China, August 7-12, 2005.