

УДК 621.039.58

АНАЛИЗ ЭФФЕКТА ФЛАКСА ДЛЯ ОЦЕНКИ РАДИАЦИОННОГО ОХРУПЧИВАНИЯ КОРПУСОВ ВВЭР-440

Крюков А. М., д.т.н. (kryukov@secnrs.ru),
Рубцов В. С., к.т.н. (vrubtsov@secnrs.ru)
(ФБУ «НТЦ ЯРБ»)

Выполнен анализ результатов исследования зависимости радиационного охрупчивания материалов корпусов ВВЭР-440 от флкса нейтронов. Облучение образцов высоким флксом, соответствующим флксу, воздействующему на корпус реактора, проводилось в каналах для образцов свидетелей. Показано, что зависимость радиационного охрупчивания материалов корпусов ВВЭР-440 от флкса нейтронов становится значимой при содержании меди выше 0,13 %.

► **Ключевые слова:** эффект флкса, ВВЭР-440, корпус реактора, радиационное охрупчивание, флюенс нейтронов, флкс нейтронов.

FLUX EFFECT ANALYSIS IN WWER-440 REACTOR PRESSURE VESSEL STEELS

Kryukov A., Ph. D., Rubtsov V., Ph. D.
(SEC NRS)

The results of long term research concerning the determination of irradiation embrittlement dependence on fast neutron flux for WWER-440 reactor pressure vessel steels are presented in this paper. All Charpy specimens were irradiated at high and low fluence rates in similar conditions in surveillance channel positions. It can be seen that there is a significant flux effect in such WWER-440 reactor pressure vessel steels with higher copper content (> 0.13wt %).

► **Key words:** Flux effect, WWER-440 reactor pressure vessel, radiation embrittlement, neutron fluence, neutron flux.

Роль эффекта флакса при оценке радиационного охрупчивания корпусов реакторов

Корпус реактора является важнейшим по влиянию на безопасность элементом реакторной установки. Разрушение корпуса реактора не допускается ни при каких обстоятельствах и не входит в перечень проектных аварий. При продолжительной эксплуатации корпусов вследствие воздействия реакторного облучения, высокой температуры и циклического нагружения происходит охрупчивание как основного металла корпуса реактора, так и металла сварных швов, в результате чего при гидравлических испытаниях корпуса и в случае возникновения аварий с заливом активной зоны холодной водой может возникнуть опасность его хрупкого разрушения.

Максимальное воздействие на механические свойства металла корпуса в процессе эксплуатации оказывает нейтронное облучение, приводящее к радиационному охрупчиванию, – нарушению структуры металла в результате бомбардировки его нейтронами с высокой энергией.

Основным фактором, определяющим изменение свойств материалов (критической температуры хрупкости, предела текучести и других) под облучением, является величина флюенса быстрых нейтронов. Кроме того, известно [1–2], что изменение свойств стали под облучением является результатом воздействия целого ряда других факторов, которые можно разделить на две группы:

- факторы, связанные со свойствами самих материалов, – химический состав и микроструктура стали;
- факторы, связанные с условиями облучения, – температура облучения, форма спектра и плотность потока нейтронов.

Таким образом, прогнозирование изменения механических свойств корпусных сталей под облучением является задачей многофакторного анализа.

Одной из основных трудностей, возникающих в процессе решения таких задач, является сложность оценки индивидуального вклада каждого из факторов при одновременном изменении нескольких. Для выявления степени значимости каждого из факторов желательно проводить такие эксперименты, в которых число варьируемых факторов минимально.

Систематические различия в кинетике изменения параметров радиационного охрупчивания материалов при облучении в условиях, которые

отличаются только плотностью потока быстрых нейтронов (флаксом), принято называть «эффект флакса».

Вопрос об эффекте флакса всегда возникает в связи с использованием результатов облучения образцов-свидетелей для оценки состояния металла корпуса ВВЭР-440. Условия облучения образцов-свидетелей и внутренней стенки корпуса реактора существенно отличаются по величине плотности потока быстрых нейтронов. Каналы для образцов-свидетелей расположены ближе к активной зоне, чем стенка корпуса. Флакс быстрых нейтронов в местах расположения образцов-свидетелей примерно в 8 – 15 раз выше, чем на корпусе ВВЭР-440. Это позволяет с опережением прогнозировать изменение свойств металла корпуса. Однако различие в величине флакса требует обоснования представительности данных, полученных при испытании образцов-свидетелей, для прогнозной оценки состояния металла корпуса.

С точки зрения современных представлений о радиационном повреждении материалов изменение прочностных и пластических свойств корпусных сталей под облучением обусловлено трансформацией их микроструктуры. Температура и время входят в число параметров, контролирующих микроструктурные изменения материалов под облучением. Это является теоретической предпосылкой проявления эффекта флакса.

Эффект флакса, начиная с семидесятых годов, неоднократно рассматривался и обсуждался как в российских [3–8], так и в зарубежных работах [9–16]. Несмотря на это, вопрос о влиянии флакса на радиационное охрупчивание сталей под облучением остается дискуссионным. Причина заключается в сложности выявления эффекта флакса. Она связана с двумя обстоятельствами:

- в результатах экспериментов эффект флакса может быть замаскирован воздействием других радиационных и материаловедческих факторов, таких как флюенс и форма спектра быстрых нейтронов, химический состав и структура сталей;
- в прямых экспериментах при облучении образцов низким флаксом требуется многолетнее (10 – 20 лет) облучение для достижения такого уровня флюенса нейтронов, который позволяет уверенно сопоставлять данные по облучению высоким и низким флаксами.

Опубликован целый ряд работ по исследованию эффекта флакса, которые не всегда связаны с проведением специальных экспериментов. К ним относятся, например, работы по анализу больших

баз данных, в частности, данных образцов-свидетелей [1, 7–11, 14–16]. Сопоставление данных по облучению двадцати корпусных сталей в составе программ образцов-свидетелей (облученных в различных позициях, отличающихся величиной флакса) и в исследовательском реакторе ВАК проведено в работе [10]. По мнению авторов этой работы, результаты исследовательских программ и программ образцов-свидетелей Германии не указывают на значимый эффект флакса. Однако в данной работе была сделана только качественная оценка приведенных данных.

Авторы работы [11] провели анализ моделей, которые разработаны на базе данных американских образцов-свидетелей, состоящей из ~ 700 экспериментальных точек. В [11] отмечается, что эффект флакса не существенен в интересующем диапазоне флюенсов. Однако авторы работы [15], анализируя ту же самую базу данных, приходят к выводу о том, что эффект флакса значим для ~ 20 % данных по сварным швам.

Среди опубликованных источников по исследованию эффекта флакса можно выделить несколько, использующих идею сопоставления результатов исследования трепанов, вырезанных из корпусов реакторов, которые выведены из эксплуатации, с результатами ускоренного облучения аналогичных материалов [12–13]. Однако анализ результатов исследований трепанов [12] показал важность учета разброса данных по толщине корпуса в исходном состоянии. Разброс значений критической температуры хрупкости по толщине корпуса в исходном состоянии сопоставим с изменением ее в результате облучения.

Таким образом, опубликованные к настоящему времени результаты оценок эффекта флакса, основанные на анализе уже существующих баз данных по многофакторным экспериментам, не позволяют однозначно определить эффект флакса. По-видимому, как отмечено выше, эффект флакса «замаскирован» воздействием различных радиационных и материаловедческих факторов.

Более перспективными для выявления эффекта флакса являются прямые эксперименты по облучению одних и тех же материалов в условиях, которые отличаются только уровнем флакса. К таким исследованиям можно отнести работы [7, 14–16]. Работы [7, 14, 15] выполнены на промышленных сталях, а работа [16] – на модельных Fe-Cu-Ni-Mn сплавах.

Очень кратко обобщая идеи, заложенные в работах [7, 14–16], и результаты, полученные

в них, необходимо отметить, что проявление эффекта флакса возможно в тех сталях, для которых основными механизмами радиационного упрочнения и охрупчивания являются образование медных преципитатов и матричное повреждение. В сталях с низким содержанием меди не обнаружено образование медных преципитатов при исследовании атомным зондом [15]. Отсюда следует, что эффект флакса либо отсутствует, либо незначителен. В сталях с более высоким содержанием меди исследование атомным зондом показало наличие медно-насыщенных кластеров [15]. В этом случае обнаружен значимый эффект флакса. Авторы работы [15] полагают, что пороговое значение содержания меди, при котором возможно проявление эффекта флакса, составляет ~ 0,15 % для низконикелевых сталей и 0,10 % для сталей с высоким содержанием никеля.

Следует отметить, что в вышеупомянутых специальных экспериментах, в которых исследование эффекта флакса проводилось при параллельном облучении одних и тех же материалов высоким и низким флаксами, максимальное значение флюенса, до которого проводилось облучение низким флаксом, не превышает ~ $2 \cdot 10^{19}$ см⁻² ($E > 1$ МэВ). Кроме того, результаты получены при температуре облучения ~ 290 °С сталей корпусов типа PWR, в которых более высокое содержание марганца и никеля, а также более низкое содержание хрома и фосфора по сравнению с материалами корпусов ВВЭР-440. В связи с этим следует соблюдать определенную осторожность при интерпретации экспериментальных результатов, полученных в работах зарубежных авторов, применительно к российским материалам.

В настоящей работе выполнен анализ экспериментальных данных, полученных в рамках специального эксперимента «Флакс», выполнявшегося в течение более чем 20 лет и направленного на оценку эффекта флакса для материалов корпусов ВВЭР-440 [8]. В эксперименте «Флакс» число неконтролируемых параметров было сведено к минимуму. Это означает проведение параллельного облучения одних и тех же материалов высоким и низким флаксами при одинаковой температуре и близких спектральных характеристиках потоков быстрых нейтронов.

Облучение образцов высоким флаксом проводилось в блоке № 2 Армянской АЭС (ААЭС-2), а низким – в блоке № 1 Ровенской АЭС (РАЭС-1).

Краткая информация по эксперименту «Флакс»

В рамках эксперимента «Флакс» исследованы шесть материалов корпусов ВВЭР-440, а именно: основной металл (ОМ) – две поковки стали 15Х2МФА и четыре сварных шва (МШ) с различным содержанием примесных элементов. Содержание фосфора и меди выбраны в качестве варьируемых параметров, так как они являются элементами, концентрация которых в металле определяет радиационную стойкость корпусных сталей. Технология изготовления сварных швов и основного металла полностью соответствует штатной. В таблице 1 приведен химический состав исследованных материалов.

Все материалы были облучены при температуре 270 °С высоким флаксом $\sim 4 \times 10^{12} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ ($E > 0,5 \text{ МэВ}$) в каналах для образцов-свидетелей ААЭС-2 и низким флаксом $\sim 6 \times 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ ($E > 0,5 \text{ МэВ}$) в каналах для образцов-свидетелей РАЭС-1. Необходимо отметить, что на корпус ВВЭР-440 напротив центра активной зоны воздействует флакс $\sim 4 \times 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ ($E > 0,5 \text{ МэВ}$), что примерно соответствует условиям облучения образцов-свидетелей в реакторе РАЭС-1.

Низкий уровень флакса в местах расположения образцов-свидетелей РАЭС-1 является результатом установки на периферии активной зоны 36 кассет-экранов, что приводит к снижению в 3 раза уровня флакса на внутренней стенке корпуса реактора этого энергоблока.

В процессе реализации программы «Флакс» образцы приведенных в таблице 1 материалов, установленные в каналах для образцов-свидетелей, периодически извлекались и испытывались после облучения в течение одной или нескольких кампаний.

Оценка критической температуры хрупкости на облученных образцах

Степень охрупчивания стали под облучением оценивалась по величине сдвига критической температуры хрупкости (ΔT_k), полученной при испытаниях на ударную вязкость стандартных образцов типа Шарпи:

$$\Delta T_k = T_k - T_{ко}, \quad (1)$$

где:

T_k – критическая температура хрупкости стали в облученном состоянии;

$T_{ко}$ – критическая температура хрупкости стали в исходном состоянии.

Значения $T_{ко}$ и T_k определяли в соответствии с [17]:

$$T_k, T_{ко} = \max \{T_{47Дж}, (T_{71Дж} - 30)\}, \quad (2)$$

где $T_{47Дж}$, $T_{71Дж}$ – значения температур испытания образцов, при которых температурная зависимость ударной вязкости стали достигает значений 47 и 71 Дж, соответственно.

Значения T_k исследованных материалов приведены в таблицах 2 – 3.

Таблица 1

Химический состав основного металла и сварных швов, вес. %

Материал	C	Mn	Si	Ni	Cr	Mo	V	Cu	P	S
МШ А2	0,07	1,30	0,56	0,16	1,63	0,50	0,22	0,18	0,028	0,022
ОМ 109868	0,17	0,42	0,20	0,15	2,60	0,59	0,20	0,10	0,022	0,013
МШ 12	0,06	0,77	0,29	0,14	1,51	0,53	0,12	0,08	0,013	0,010
МШ 28	0,05	1,21	0,45	0,13	1,31	0,44	0,18	0,14	0,028	0,017
МШ 37	0,06	1,32	0,20	0,15	1,11	0,38	0,20	0,13	0,036	0,011
ОМ 108033	0,17	0,49	0,28	0,13	2,72	0,62	0,33	0,14	0,014	0,010

Таблица 2

Результаты испытаний ускоренно облученных образцов

Материал	P	Cu	F, 10 ¹⁹	T _{47Дж}	T _{71Дж}	T _к	ΔT _к	Прим.
	%, вес		см ⁻²	°C				
МШ А2	0,028	0,18	-	10	20	10	-	
			13	110	125	110	100	
			25	150	170	150	140	
			50	210	240	210	200	
			91	280	> 280	> 280	> 270	ВШ ~ 58J
ОМ 109868	0,022	0,10	-	- 5	10	- 5	-	
			7	40	65	40	45	
			12,5	60	85	60	65	
			12	55	80	55	60	
			16	70	100	70	75	
			28	65	85	65	70	
			50	145	160	145	150	
МШ 12	0,013	0,08	-	- 15	- 5	- 15	-	
			14	70	80	70	85	
			20	105	115	105	120	
			50	220	> 280	> 250	> 265	ВШ ~ 50J
МШ 28	0,028	0,14	-	20	35	20	-	
			15	110	120	110	90	
			14	110	130	110	90	
			20	145	155	145	125	
			52	200	280	250	230	ВШ ~ 66J
МШ 37	0,036	0,13	-	0	30	0	-	
			5	110	150	120	120	
			10	130	160	130	130	
			13	160	240	210	210	
			16	130	180	150	150	
			27	210	230	210	210	
			40	240	> 280	> 250	> 250	ВШ ~ 60J
ОМ 108033	0,014	0,14	-	- 50	- 30	- 50	-	
			13	-	-	-	40	
			22	-	-	-	50	

Примечание. ВШ – значение верхнего шельфа ударной вязкости стали.

Таблица 3

Результаты испытаний образцов, облученных низким флаксом

Материал	P	Cu	F, 10 ¹⁹	T _{47Дж}	T _{71Дж}	T _к	ΔT _к	Прим.
	%, вес		см ²	°C				
МШ А2	0,028	0,18	-	10	20	10	-	
			1,7	90	115	90	80	
			5,0	100	140	110	100	
			8,3	125	130	125	115	
			13,6	140	190	160	150	
			21	150	200	170	160	
			31	180	210	180	170	
ОМ 109868	0,022	0,10	-	- 5	10	- 5	-	
			2	35	50	35	40	
			7	45	75	45	50	
			10	45	70	45	50	
			15	75	80	75	80	
			27	105	125	105	110	
МШ 12	0,013	0,08	-	- 15	- 5	- 15	-	
			1,6	10	15	10	25	
			3,2	20	25	20	35	
			7,2	45	50	45	60	
			13,4	90	110	90	115	
МШ 28	0,028	0,14	-	20	35	20	-	
			2	110	130	110	90	
			6,5	110	135	110	90	
			14	160	190	160	140	
			30	190	210	190	170	
МШ 37	0,036	0,13	-	0	30	0	-	
			2	85	130	100	100	
			7,2	120	150	120	120	
			14	170	230	200	200	
			30	180	-	> 250	> 250	ВШ ~ 65J
ОМ 108033	0,014	0,14	-	- 50	- 30	- 50	-	
			1,6	10	10	10	60	
			6,2	10	10	10	60	
			9	- 5	0	- 5	45	
			13	15	25	15	65	
			20	20	30	20	70	
			31	15	25	65	125	

Примечание. ВШ – значение верхнего шельфа ударной вязкости стали.

Анализ экспериментальных данных

Зависимости сдвига T_k от флюенса нейтронов

Матрица экспериментальных данных по облучению шести корпусных сталей, исследованных в

настоящей работе, состоит из 54 точек. Количество точек для разных групп данных представлено в таблице 4.

На рис. 1 – 6 показаны зависимости, аппроксимирующие экспериментальные результаты при облучении образцов высоким и низким флаксами.

Таблица 4

Количество экспериментальных точек по облучению образцов различными флаксами нейтронов

Материал	Облучение низким флаксом	Облучение высоким флаксом
МШ А2	6	4
ОМ 109868	5	6
МШ 12	4	3
МШ 28	4	4
МШ 37	4	6
ОМ 108033	6	2

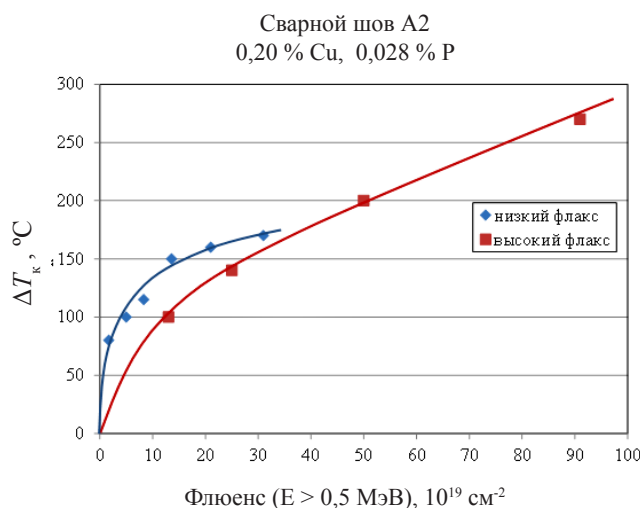


Рис. 1. Радиационное охрупчивание сварного шва А2, облученного низким и высоким флаксами

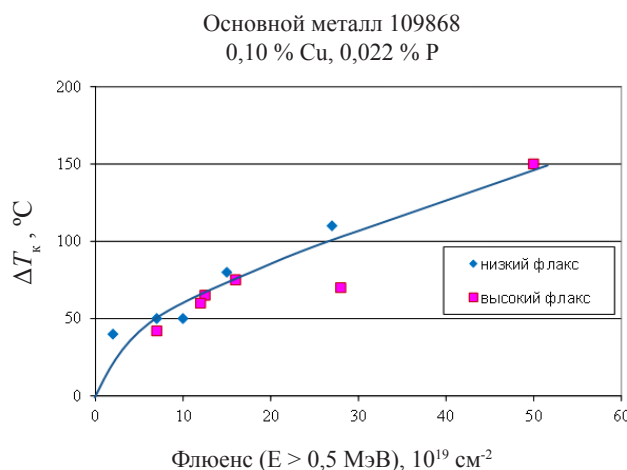


Рис. 2. Радиационное охрупчивание основного металла 109868, облученного низким и высоким флаксами

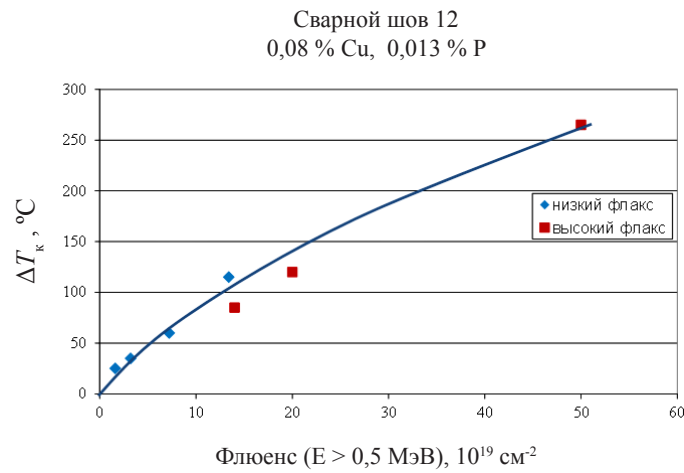


Рис. 3. Радиационное охрупчивание сварного шва 12, облученного низким и высоким флуксами

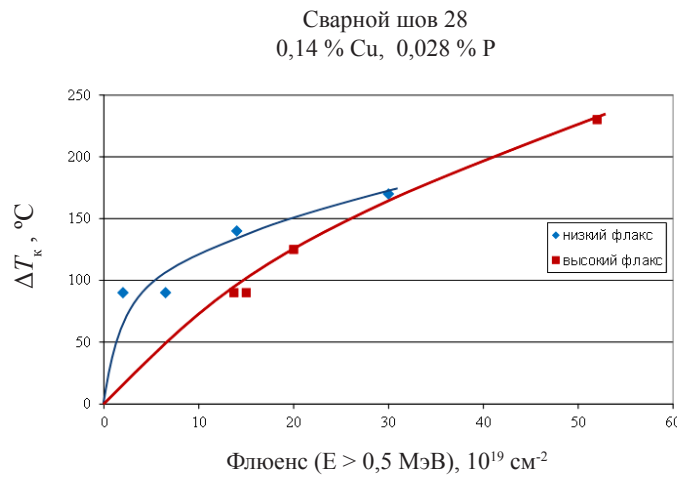


Рис. 4. Радиационное охрупчивание сварного шва 28, облученного низким и высоким флуксами

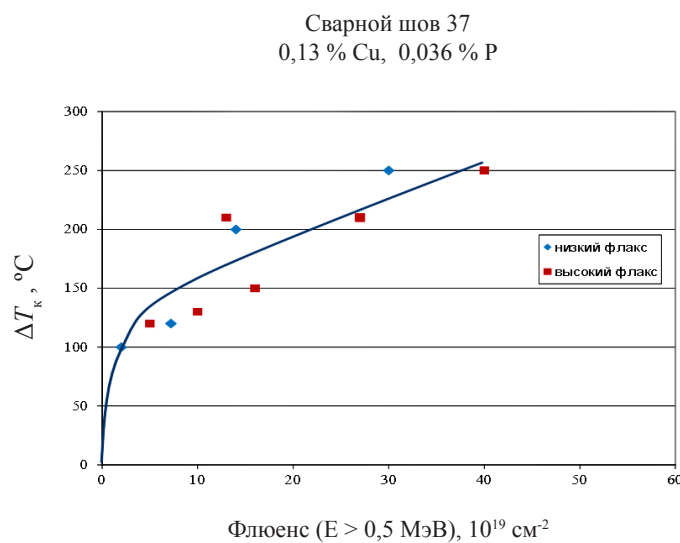


Рис. 5. Радиационное охрупчивание сварного шва 37, облученного низким и высоким флуксами

Сварной металл 108033
0,145 % Cu, 0,014 % P

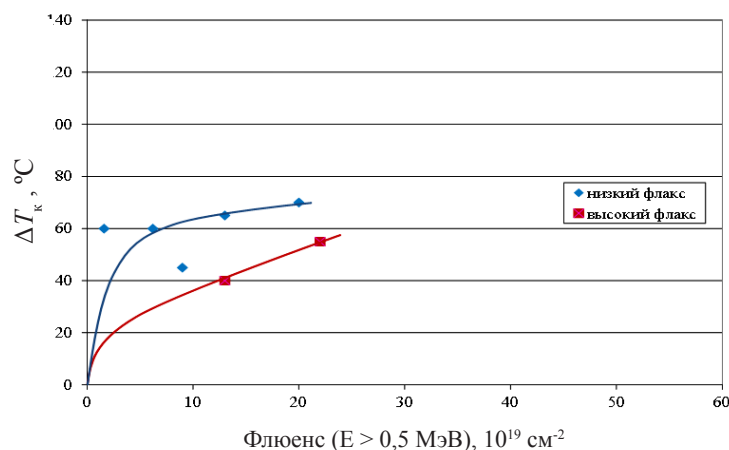


Рис. 6. Радиационное охрупчивание основного металла 108033, облученного низким и высоким флюксами

Расчетные значения коэффициентов радиационного охрупчивания

Оценка изменения T_k материалов корпусов ВВЭР-440 после облучения высоким и низким флюксами проводилась в соответствии с разделом 5.8.4 [17] на основе соотношения:

$$\Delta T_k = A_F F^{1/3}, \quad (3)$$

где:

F – флюенс нейтронов ($E > 0,5$ МэВ), 10^{18} см⁻²;

A_F – коэффициент радиационного охрупчивания материала:

а) $A_F = 800(C_p + 0,07C_{Cu})$ для сварных швов;

б) $A_F = 18$ для основного металла;

C_p – содержание в металле фосфора, %;

C_{Cu} – содержание в металле меди, %.

В таблице 5 приведены значения A_F для исследованных материалов, рассчитанные на основе содержания в них фосфора и меди.

Сравнение экспериментальных данных, полученных после облучения образцов высоким и низким флюксами

Матрица экспериментальных данных по облучению шести корпусных сталей, исследованных в работе, состоит из 54 точек (см. таблицу 4).

Анализ данных проводился с использованием статистических методов обработки. Рассматривался набор парных данных ΔT_{ki} и F_i , где:

а) ΔT_{ki} – значение сдвига критической температуры хрупкости для материала, облученного флюенсом F_i ;

б) $i = 1, \dots, n$ – номер эксперимента по облучению.

В данном случае F_i является независимой переменной, ΔT_{ki} – зависимой переменной.

Задача «наилучшей» аппроксимации набора пар данных ΔT_{ki} и F_i решалась следующим образом: в качестве функции, описывающей зависимость $\Delta T_k = f(F)$, в соответствии с [17] была выбрана степенная функция уравнения (3), параметр A_F оценивался методом наименьших квадратов (МНК) по значениям ΔT_{ki} и $F_i^{1/3}$.

Пары значений ΔT_{ki} и $F_i^{1/3}$ были сгруппированы по следующему принципу: в одну группу помещались результаты, относящиеся к одному материалу и имеющие одинаковый уровень флюкса (высокий или низкий). Для каждой группы данных оценивалось значение A_F и устанавливалась зависимость $\Delta T_k = A_F F^{1/3}$. Для вычисления 95 %-ных верхней и нижней границ этой зависимости использовалась формула:

$$B = [A_F \pm t_{0,95}(n-1)S] F^{1/3}, \quad (4)$$

где:

$t_{0,95}(n-1)$ – двусторонний 95 %-ный квантиль распределения Стьюдента с числом степеней свободы $(n-1)$;

n – число экспериментальных точек (при большом количестве данных значение квантили $t_{0,95}(n-1)$ приближается к 95 %-ной квантили стандартного нормального распределения 1,96);

S – стандартная ошибка оценки A_F .

В таблице 6 приведены МНК-оценки коэффициента A_F , значения стандартной ошибки S и квантили $t_{0,95}(n-1)$ распределения Стьюдента для всех исследованных материалов.

Таблица 5

**Расчетные значения коэффициента радиационного охрупчивания
исследованных материалов**

Материал	C_p %	C_p , %	A_F
МШ А2	0,028	0,18	32,5
ОМ 109868	0,022	0,10	18,0
МШ 12	0,013	0,08	14,9
МШ 28	0,028	0,14	30,2
МШ 37	0,036	0,13	36,1
ОМ 108033	0,014	0,14	18,0

Таблица 6

Расчитанные по МНК значения A_F , S и $t_{0,95}(n-1)$

Материал	Флакс	A_F	S	$t_{0,95}(n-1)$	$A_F + t_{0,95}(n-1) S$	$A_F - t_{0,95}(n-1) S$
ОМ 109868	низкий	16,4	1,2	2,8	19,8	13,0
	высокий	15,0	0,9	4,3	18,9	11,1
МШ 12	низкий	18,2	2,2	2,8	24,5	11,9
	высокий	22,0	1,8	4,3	29,9	14,2
МШ 28	низкий	32,0	2,5	2,8	39,1	25,0
	высокий	22,9	1,7	3,2	28,4	17,5
МШ А2	низкий	32,4	2,0	2,6	37,5	27,3
	высокий	25,6	1,5	4,3	32,0	19,3
МШ 37	низкий	40,2	2,5	3,2	48,2	32,2
	высокий	39,9	1,7	2,8	44,7	35,0
ОМ 108033	низкий	15,2	1,2	2,6	18,3	12,1
	высокий	9,6	0,3	4,3	10,9	8,3

Чтобы выяснить, является ли существенным различие между модельными зависимостями радиационного охрупчивания стали после облучения высоким и низким флаксами, был использован статистический тест Чоу (Chow). Тест Чоу, называемый также тестом проверки устойчивости модели или отсутствия структурных изменений, проверяет гипотезу о совпадении соответствующих коэффициентов двух моделей. Малая величина ($< 0,05$) P -значения статистики, которую вычисляют в этом тесте, означает, что основная гипотеза должна быть отвергнута (на 95 %-ном уровне значимости), и каждую группу данных следует описывать своей моделью. В противном случае две группы данных следует описать одной моделью.

В таблице 7 приведены P -значения, которые получаются при проверке гипотезы о том, что экспериментальные значения ΔT_k для данного материала описываются одной и той же моделью при облучении высоким и низким флаксами.

Величины P -значений, приведенных в таблице 7, показывают, что для основного металла 109868 и сварных швов 12 и 37 различия в значениях ΔT_k для одного и того же флюенса статистически незначимы ($P > 0,05$) при облучении высоким и низким флаксами. Радиационное охрупчивание этих трех материалов происходит в соответствии с одной и той же зависимостью ΔT_k от флюенса нейтронов.

При проверке гипотезы о том, что экспериментальные значения ΔT_k описываются одной и той же моделью, для сварных швов А2, 28 и основного металла ОМ 108033 получены P -значения $< 0,05$. Это означает, что при облучении высоким и низким флаксами металла этих материалов различие в значениях ΔT_k для одного и того же флюенса статистически значимы. Соответственно, радиационное охрупчивание этих трех материалов происходит в соответствии с различными зависимостями ΔT_k от флюенса нейтронов при облучении высоким и низким флаксами нейтронов.

***P*-значения для исследования материалов экспериментальных данных**

Таблица 7

Материал	<i>P</i> -значение
МШ А2	0,04 < 0,05
ОМ 109868	0,43 > 0,05
МШ 12	0,24 > 0,05
МШ 28	0,02 < 0,05
МШ 37	0,61 > 0,05
ОМ 108033	0,01 < 0,05

Поскольку в программе «Флакс» облучение образцов проводилось в одинаковых условиях, предполагается, что обнаруженные различия в чувствительности к эффекту флакса связаны со значениями содержания в металле примесных элементов, определяющими радиационную стойкость корпусных сталей, а именно – фосфора и меди.

Оценка порогового значения содержания меди в стали для учета эффекта флакса

Анализ механизмов радиационного охрупчивания материалов корпусов ВВЭР-440 выполнен в работе [6], авторы которой отмечают, что существует три главных механизма радиационного охрупчивания корпусных сталей, а именно:

- упрочнение матрицы путем образования точечных дефектов и дислокационных петель, препятствующих движению линейных дислокаций, посредством которого реализуется пластическая деформация металла;

- упрочнение стали в результате образования примесными элементами кластеров/преципитатов размером 1 – 3 нанометров, которые также затрудняют движение дислокаций;

- образование сегрегаций на межфазных границах и границах бывших аустенитных зерен в результате ускоренной диффузии атомов фосфора.

В заключении работы [6] указывается, что эффект флакса предполагается незначимым, если радиационное охрупчивание контролируется матричным упрочнением и образованием зернограницных фосфорных сегрегаций. Однако в случае, если ключевым механизмом является образование медных кластеров и преципитатов в теле зерна, эффект флакса значим и сдвиг T_k под облучением должен возрасти при уменьшении флакса нейтронов.

Такой же точки зрения придерживаются авторы работ [15, 18, 19] по исследованию эффекта флакса на зарубежных корпусных сталях. По их мнению, эффект флакса должен наблюдаться для сталей с высоким содержанием меди в металле, в которых главным механизмом радиационного охрупчивания является образование медных преципитатов. В [15] предложена модель оценки повышения критической температуры хрупкости под облучением в результате образования под облучением медных преципитатов.

Основные положения этой модели следующие:

- максимальное значение вклада данного механизма в радиационное охрупчивание не зависит от флакса нейтронов;
- кинетика радиационного упрочнения стали зависит от флакса.

Графически модель из [15] показана на рис. 7. Согласно модели, чем выше флаксы нейтронов, тем меньше вклад механизма образования медных преципитатов в увеличение сдвига T_k под облучением.

Вид зависимостей сдвига T_k от флюенса, представленных на рис. 1, 4 и 6, соответствует модели [15]. В то же время для материалов, радиационное охрупчивание которых приведено на рис. 2 – 3 и 5, эффект флакса не наблюдается. Кроме того, необходимо отметить, что на рис. 1, 4 и 6 при флюенсах $\sim 3 \times 10^{20} \text{ см}^{-2}$ зависимости радиационного охрупчивания, полученные при облучении низким и высоким флаксами, сходятся и эффект флакса не наблюдается.

В качестве критерия оценки эффекта флакса в настоящей работе выбрана разность значений ΔT_k материалов, облученных высоким и низким флаксами до флюенса $10 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ (примерно соответствует воздействию на корпус в зоне сварного шва в течение 25 лет эксплуатации):

$$dT_k = \Delta T_k (\text{низкий флаксы}) - \Delta T_k (\text{высокий флаксы}) \quad (3)$$

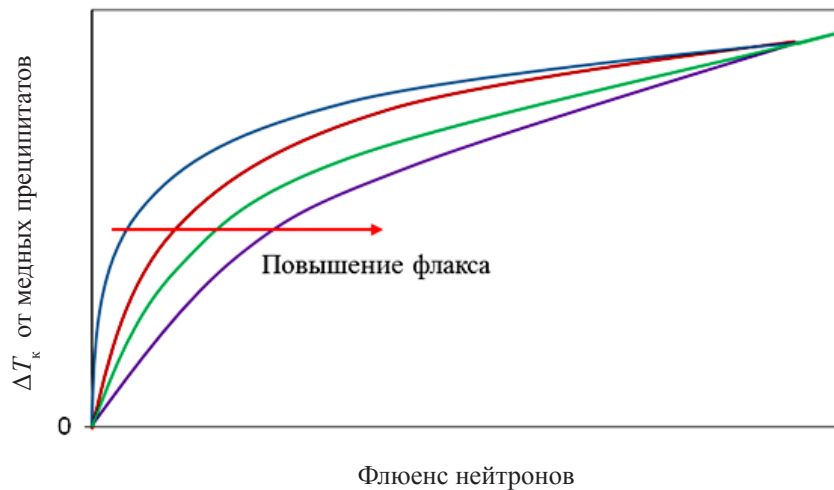


Рис. 7. Схема модели зависимости сдвига T_k от флюенса и флаксы нейтронов

Необходимо особенно отметить, что примерно до флюенса $10 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ образцы облучены как низким, так и высоким флаксами, и сравнение экспериментальных данных при этом значении флюенса является максимально корректным.

Для установления зависимости эффекта флаксы от содержания примесей были оценены значения коэффициентов корреляции (R) между dT_k и содержанием в стали фосфора и меди после облучения флюенсом $10 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$. Результаты оценки представлены в таблице 8.

Из таблицы 8 следует, что коэффициент корреляции между dT_k и C_{Cu} является значимым, то есть подтверждает наличие связи между dT_k и C_{Cu} .

В то же время из таблицы 8 следует, что коэффициент корреляции между dT_k и C_p является незначимым, то есть отсутствует связь между dT_k и C_p .

Таким образом, эффект флаксы не зависит от содержания фосфора в стали и определяется содержанием меди в металле. Зависимость эффекта флаксы от содержания меди в анализируемых в настоящей работе материалах корпусов ВВЭР-440 (основного металла и сварных швов) представлена на рис. 8.

Из рис. 8 следует, что при низком содержании меди (0,08 – 0,12 %) в сварном шве 12 и в основном металле 109868 эффект флаксы не наблюдается. Это согласуется с представлением о существовании порогового значения концентрации меди в металле, которое, согласно работе [15], для материалов корпусов PWR составляет 0,15 %. Как показано на рис. 8, для корпусов ВВЭР-440 эффект флаксы ста-

новится значимым при содержании меди выше 0,13 % (см. основной металл 108033 и сварные швы А2 и 28).

Испытания металла сварного шва 37 ($C_{Cu} = 0,13 \%$) не выявили эффекта флаксы, несмотря на существенные сдвиги T_k под облучением (рис. 5) вследствие высокого содержания в металле фосфора ($C_p = 0,036 \%$). В этом случае, как указывается в [6], значительное радиационное охрупчивание стали в результате сегрегации атомов фосфора на межфазных границах, зависящее от флюенса, «перекрывает» эффект флаксы.

Флюенс нейтронов в конце проектного срока эксплуатации корпусов ВВЭР-440 с полной нагрузкой составляет $16 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ для сварного шва и $24 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ для основного металла. Как видно из рис. 1 – 4 и 6, при таких значениях флюенса и при продлении эксплуатации за проектный срок для обеспечения консервативности расчетов должен учитываться эффект флаксы. С учетом эффекта флаксы сдвиг T_k критических элементов корпуса может быть на 20 – 50 °С выше, чем на основе экспериментальных данных, полученных при облучении высоким флаксом.

Необходимо отметить, что облучение образцов-свидетелей материалов некоторых корпусов ВВЭР-440, а именно 3 и 4 блоков Кольской АЭС, проводилось высоким флаксом $\sim 4 \times 10^{12} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$. В связи с этим при анализе экспериментальных данных после облучения материалов в каналах для образцов-свидетелей этих энергоблоков должен быть учтен эффект флаксы.

Таблица 8

Значения коэффициентов корреляции (R)

Сравниваемые параметры	Коэффициент корреляции (R)	P-значение
dT_k и C_{Cu}	0,75	0,041 < 0,05
dT_k и C_p	0,28	0,298 > 0,05

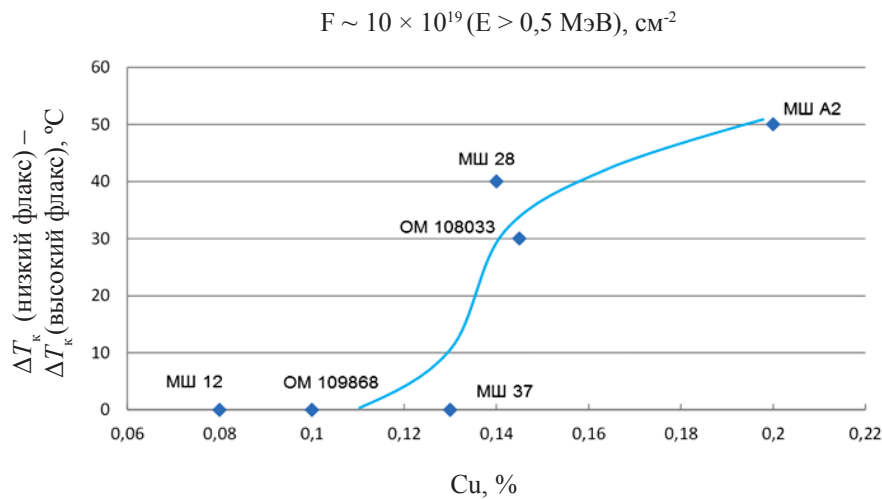


Рис. 8. Зависимость эффекта флакса от содержания меди в металле корпусов ВВЭР-440

Заключение

В результате анализа данных механических испытаний образцов материалов корпусов ВВЭР-440, ускоренно облученных флаксом нейтронов $\sim 4 \times 10^{12} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ и флаксом $\sim 6 \times 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, соответствующим флаксу, воздействию на корпус реактора, установлены различия в кинетике изменения параметров радиационного охрупчивания материалов при облучении высоким и низким флаксами (эффект флакса).

Показано, что в ряде случаев оценка степени радиационного охрупчивания корпусов на основе результатов ускоренного облучения (образцы-свидетели и образцы, облученные в исследовательских реакторах) является неконсервативной.

На основе статистического анализа экспериментальных данных, полученных при облучении образцов с различным содержанием фосфора и меди, установлено, что зависимость радиационного охрупчивания материалов корпусов ВВЭР-440 от флакса нейтронов при флюенсе $\sim 10 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ определяется содержанием меди в стали. Зависимость

эффекта флакса от содержания в стали фосфора не установлена.

Определено значение содержания меди в металле корпусов ВВЭР-440, выше которого эффект флакса становится значимым. Указанное пороговое значение составляет 0,13 %.

На основе результатов выполненной работы подготовлены предложения по учету эффекта флакса при оценке сопротивления хрупкому разрушению материалов корпусов ВВЭР-440 в соответствующих разделах перерабатываемых в настоящее время ПНАЭ Г-7-002-86 (а также национальных и отраслевых стандартах), а именно:

- при анализе результатов механических испытаний выполнять селекцию экспериментальных данных в зависимости от флакса нейтронов, действовавших на образцы в процессе облучения;
- при облучении образцов флаксом нейтронов $\sim 10^{12} - 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ для обеспечения консервативности оценки выполнять коррекцию результатов испытаний с учетом содержания меди в образцах;
- при содержании меди в образцах ниже 0,13 % эффект флакса может не учитываться.

Список литературы

1. Amaev A., Kryukov A., Levit V., Sokolov M. Radiation stability of WWER-440 vessel materials, ASTM STR 1170, Philadelphia, 1993.
2. Alekseenko N., Amaev A., Gorynin I., Nikolaev V. Radiation Damage of Nuclear Power Plant Pressure Vessel Steels, American Nuclear Society, Illinois USE, 1997.
3. Амаев А. Д., Вихров В. И., Крюков А. М., Кузьмин С. И., Курсаков С. Н., Соколов М. А. Влияние плотности потока быстрых нейтронов на параметры радиационного охрупчивания материалов корпуса реактора ВВЭР-440. Препринт ИАЭ ИАЭ-4680/11, Москва, 1988.
4. Николаев В. А., Рядков Л. Н. Роль спектра и плотности нейтронного потока в радиационном охрупчивании стали марки 15Х2МФА и металле сварных швов // В сб. Радиационное материаловедение и конструкционная прочность реакторных материалов, Санкт-Петербург, 2002.
5. Kryukov A., Debarberis L., Ballesteros A., Krsjak V., Burcl R., Rogozhkin S., Nikitin A., Aleev A., Zaluzhnyi A., Grafutin V., Ilyukhina O., Funtikov Yu., Zeman A. // Journal of Nuclear Materials, № 429, 2012.
6. Margolin B. Z., Yurchenko E. V., Morozov A. M., Pirogova N. E., Brumovsky M. // Journal of Nuclear Materials, № 434, 2013.
7. Kryukov A., Blagoeva D., Debarberis L. Flux effect analysis in WWER-440 reactor pressure vessel steels // Journal of Nuclear Materials, № 443, 2013.
8. Chernobaeva A. A., Kryukov A. M., Amaev A. D., Erak D. Yu., Platonov P. A., Shtrombakh Ya. I. Role of flux effect on radiation embrittlement of VVER-440 reactor pressure vessel materials / Proceedings of IAEA specialist meeting on irradiation embrittlement and mitigation. Kristal Goos, Russia, 2004.
9. Petrequin P. A Review of Formulas for prediction Irradiation Embrittlement of Reactor Vessel Materials / AMES Report No. 6 EUR 16455 EN, 1996.
10. Langer R., Bartsch R. & Foehl J. Irradiation Results for Different Reactors, Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
11. Rosinski S. & Server B. Consideration of Dose Rate in development of an Embrittlement Correlation for U.S. Reactor Pressure Vessel Steels / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
12. Server B., English C. & Rosinski S. Critical Review of Embrittlement Attenuation Through a Reactor Pressure Vessel Wall: Influence of Dose Rate / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
13. Suzuki M., Onizava K., Idei Y. & Iskander Sh. Evaluation of Mechanical Properties on a Decommission Reactor Pressure Vessel / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
14. Dochi K., Soneda N., Onchi T., Ishino S., Odette G. & Lucas G. Dose Rate Effect in Low Copper Steels Irradiated in FNR / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
15. Williams T., Ellis D., O'Connell W. Dose Rate Effects in High and Low Nickel welds / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
16. Odette G. R., Lucas G. E. & Klingensmidt R. D. Recent data and Analysis on Flux Effects on RPV Embrittlement / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
17. ПНАЭ Г-7-002-86. Нормы расчета на прочность оборудования и трубопроводов атомных энергетических установок. – М.: Энергоатомиздат, 1989.
18. Odette G. R., Yamamoto T. & Klingensmidt R. D. On the Effect of Dose Rate on Irradiation Hardening of RPV Steels // Philosophical magazine. Vol. 25, Nos. 4–7, 01.02–01.03, 2005.
19. Pareige P., Stoler R., Russel K. & Miller M. Atom probe characterization of the microstructure of nuclear pressure vessel surveillance material after neutron irradiation and after annealing treatments // Journal of Nuclear Materials, № 249, 1997.

References

1. Amaev A., Kryukov A., Levit V., Sokolov M. Radiation stability of WWER-440 vessel materials, ASTM STR 1170, Philadelphia, 1993.
2. Alekseenko N., Amaev A., Gorynin I., Nikolaev V. Radiation Damage of Nuclear Power Plant Pressure Vessel Steels, American Nuclear Society, Illinois USE, 1997.
3. A.D. Amaev, V.I. Vikhrov, A.M. Kryukov, S.I. Kuzmin, S.N. Kursakov, M.A. Sokolov. Fast neutron flux impact on parameters of radiation-induced embrittlement of VVER-440 RPV materials. AEI Preprint IAE-4680/11, Moscow, 1988.
4. V.A. Nikolaev, L.N. Ryadkov. Role of neutron flux spectrum and density in radiation-induced embrittlement of the 15X2MΦA steel and weld metal // In a compilation "Radiation material science and structural strength of reactor materials", St.-Petersburg, 2002.
5. Kryukov A., Debarberis L., Ballesteros A., Krsjak V., Burcl R., Rogozhkin S., Nikitin A., Aleev A., Zaluzhnyi A., Grafutin V., Ilyukhina O., Funtikov Yu., Zeman A. // Journal of Nuclear Materials, № 429, 2012.
6. Margolin B. Z., Yurchenko E. V., Morozov A. M., Pirogova N. E., Brumovsky M. // Journal of Nuclear Materials, № 434, 2013.
7. Kryukov A., Blagoeva D., Debarberis L. Flux effect analysis in WWER-440 reactor pressure vessel steels // Journal of Nuclear Materials, № 443, 2013.
8. Chernobaeva A. A., Kryukov A. M., Amaev A. D., Erak D. Yu., Platonov P. A., Shtrombakh Ya. I. Role of flux effect in radiation embrittlement of VVER-440 reactor pressure vessel materials / Proceedings of IAEA specialist meeting on irradiation embrittlement and mitigation. Kristal Goos, Russia, 2004.
9. Petrequin P. A Review of Formulas for Prediction of Irradiation Embrittlement of Reactor Vessel Materials / AMES Report No. 6 EUR 16455 EN, 1996.
10. Langer R., Bartsch R. & Foehl J. Irradiation Results for Different Reactors, Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
11. Rosinski S. & Server B. Consideration of Dose Rate in Development of an Embrittlement Correlation for U.S. Reactor Pressure Vessel Steels / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
12. Server B., English C. & Rosinski S. Critical Review of Embrittlement Attenuation Through a Reactor Pressure Vessel Wall: Influence of Dose Rate / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
13. Suzuki M., Onizava K., Idei Y. & Iskander Sh. Evaluation of Mechanical Properties of a Decommission Reactor Pressure Vessel / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
14. Dochi K., Soneda N., Onchi T., Ishino S., Odette G. & Lucas G. Dose Rate Effect in Low Copper Steels Irradiated in FNR / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
15. Williams T., Ellis D., O'Connell W. Dose Rate Effects in High and Low Nickel welds / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
16. Odette G. R., Lucas G. E. & Klingensmidt R. D. Recent Data and Analysis on Flux Effects on RPV Embrittlement / Conference Proceedings "Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials". Olympic Valley, CA, 2001.
17. PNAE G-7-002-86. Strength analysis code for nuclear plant pipelines and components. – M.: Energoatomizdat, 1989.
18. Odette G. R., Yamamoto T. & Klingensmidt R. D. On the Effect of Dose Rate on Irradiation Hardening of RPV Steels // Philosophical magazine. Vol. 25, Nos. 4–7, 01.02–01.03, 2005.
19. Pareige P., Stoler R., Russel K. & Miller M. Atom probe characterization of the microstructure of nuclear pressure vessel surveillance material after neutron irradiation and after annealing treatments // Journal of Nuclear Materials, № 249, 1997.

