РАЗДЕЛ ПЕРВЫЙ ОБЩИЕ ВОПРОСЫ

УДК 669.3.004.12:539.389.2.04 АНАЛИЗ СОСТОЯНИЯ МЕТАЛЛА КОРПУСОВ ДЕЙСТВУЮЩИХ РЕАКТОРОВ ВВЭР

П.А.Платонов, Я.И.Штромбах, Ю.А.Николаев РНЦ "Курчатовский институт", г.Москва, Россия

У роботі запропоновані покращенні моделі консервативних оцінок ступеня радіаційної крихкості корпусних сталей водо-водяних реакторів типу BBEP-440 та BBEP-1000.

В работе предложено улучшение модели консервативных оценок степени радиационного охрупчивания корпусных сталей водо-водяных реакторов типа BBЭP-440 и BBЭP-1000.

The modernired models of the conservative extimation of the pressure vissels steels radiation embrittlement degree for light water reactors VVER 440 and VVER 1000 types has been proposed.

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в России действует два поколения водо-водянных энергетических реакторов (ВВЭР). К первому поколению относятся реакторы ВВЭР-440/230, ко второму – ВВЭР-440/213 и ВВЭР-1000.

Сварные швы корпусов реакторов первого поколения имеют повышенное загрязнение фосфором и медью. Все эти корпуса эксплуатируются в состоянии после отжига и близки к исчерпанию своего проектного ресурса. Исследования, проведенные на образцах металла, аналогичного металлу корпусов, а также на образцах, вырезанных непосредственно из действующих корпусов, показали, что модель горизонтального сдвига является огибающей для всех доступных к настоящему времени результатов и может быть использована для консервативной оценки охрупчивания этих корпусов на достаточно длительный период сверх проектного срока службы. Для подтверждения применимости модели горизонтального сдвига для оценки охрупчивания материалов корпусов реакторов при повторном после отжига облучении проводится дополнительное облучение темплетов, вырезанных из корпусов действующих реакторов. Использование модели горизонтального сдвига для оценки охрупчивания материала корпуса 3-го блока НВАЭС (НВАЭС-3) показало, что срок службы корпуса может быть продлен на 15 лет при условии установки кассет-экранов. Предварительное рассмотрение показывает, что срок службы остальных корпусов ВВЭР-440/230 (НВАЭС-3, 1-го и 2-го блоков Кольской АЭС) также может быть продлен без дополнительных мероприятий (при условии контроля состояния материалов корпусов реакторов по результатам исследования темплетов).

В отличие от проекта ВВЭР-440/230 корпуса реакторов ВВЭР-440/213 снабжены образцами-свидетелями, которые к настоящему времени практически все испытаны. Это позволяет сделать оценки состояния металла корпусов и возможности продления их срока службы. Предварительное рассмотрение показывает, что нормативные зависимости для коэффициента радиационного охрупчивания не являются консервативными. Неконсерватизм усиливается тем, что оценка по образцам-свидетелям, по-видимому, не является верхней оценкой, так как не учитываются эффекты флакса (образцы-свидетели облучаются с более чем десятикратным опережением) и температуры (которая для образцов-свидетелей несколько выше, чем номинальная температура корпуса реактора). Проведенные недавно прямые измерения температуры облучения образцов на Кольской АЭС позволяют устранить одну из этих неопределенностей. Относительно влияния флакса пока нет прямых убедительных данных. Однако следует отметить, что даже заведомо консервативные предположения позволяют утверждать, что безопасная эксплуатация корпусов ВВЭР-440/213 обеспечена, по крайней мере, до конца проектного срока службы и существуют перспективы его продления.

В отношении состояния корпусов ВВЭР-1000 и прогноза на будущее существует несколько большая неопределенность, что связанно с рядом причин, а именно:

 аттестация стали 15Х2НМФА(А) и ее сварных соединений проводилась на основе результатов ускоренного облучения;

- содержание никеля в сварных швах достигает 1.7...1.9 %;

- неопределенность в условиях облучения образцов-свидетелей (значительные градиенты потока нейтронов, существовавшая до последнего времени неопределенность в температуре облучения).

В последние годы предприняты значительные усилия по повышению представительности образцов-свидетелей ВВЭР-1000:

- измерение температуры облучения;

- трехмерные расчеты нейтронных полей;

 применение метода реконструкции для повышения точности определения критической температуры хрупкости.

Все это позволяет провести более адекватный анализ результатов испытаний образцов-свидетелей, требующих, однако, детального уточнения.

2. РАДИАЦИОННОЕ ОХРУПЧИВАНИЕ МАТЕРИАЛОВ КОРПУСОВ РЕАКТОРОВ ВВЭР-440

Прежде всего уточним терминологию, использованную в настоящей работе. Под корреляционной зависимостью понимается средняя для данной базы данных эмпирическая функция, коэффициенты которой рассчитаны, например, методом наименьших квадратов. Под нормативной зависимостью понимается принимаемая в качестве стандарта консервативная эмпирическая функция. Консервативность подразумевает такое стандартное преобразование средней корреляционной функции, при котором расчетные значения новой (консервативной) функции с известной долей вероятности являются их верхними оценками во всех заданных диапазонах изменения статистически значимых факторов. В настоящей работе для консервативности оценки степени радиационного охрупчивания материалов корпусов реакторов в качестве нормативной зависимости берется верхняя 95%-ная огибающая средней корреляционной зависимости. Это означает, что с вероятностью 95% экспериментальные значения радиационно-индуцированного сдвига критической температуры хрупкости будут меньше соответствующих значений, рассчитанных по нормативной зависимости.

Анализ большого числа экспериментальных данных показал, что эмпирическая зависимость, связывающая критическую температуру хрупкости с флюенсом быстрых нейтронов и химическим составом стали, может быть представлена в следующем виде [1, 2, 3]:

$$\Delta T_F = T_F - T_{\kappa 0} = A_F F^n, \qquad (2.1)$$

где $T_{\kappa 0}$, T_F – критическая температура хрупкости материала до и после облучения соответственно; A_F – параметр, зависящий от химического состава стали, обычно называемый коэффициентом радиационного охрупчивания или химическим фактором; n – показатель степени; F – флюенс быстрых нейтронов.

Госатомнадзор РФ устанавливает нормативную зависимость для расчета радиационного повреждения материалов корпусов реакторов ВВЭР-440 при температуре облучения 270 °С в виде (2.1) с n = 1/3 [3] для материала сварных швов:

$$\Delta T_F = 800 (C_P + 0.07 C_{Cu}) F^{1/3}, \,^{\circ}C, \qquad (2,2)$$

где *С*_Р и *С*_{Си} – концентрации фосфора и меди (вес. %), и для основного металла

$$\Box T_F = 18 F^{1/3}, \,^{\circ}C.$$
 (2.3)

Здесь $F - \phi$ люенс быстрых нейтронов, 10^{22} нейтрон/м² ($E \ge 0,5$ МэВ).

Ресурс корпусов ВВЭР-440 определяется, в первую очередь, радиационным охрупчиванием материала сварных швов, которое значительно выше, чем у основного металла. Это связано как с более высоким содержанием примесей в материале сварных швов по сравнению с основным металлом, так и с относительно более низкой радиационной стойкостью материала сварных швов, объясняющейся особенностями их микроструктуры (строением зерен, неметаллическими включениями и т.д.). Как видно из рис. 2.1, радиационное охрупчивание материала сварного шва (0,018% Р, 0,04% Си) выше, чем у основного металла (0,021% Р, 0,08% Си), несмотря на более высокое содержание меди и фосфора в последнем. В этой связи рассмотрение радиационного охрупчивания материалов корпусов реакторов в данной работе будет ограничено металлом сварного шва



Рис. 2.1. Радиационное охрупчивание материала сварного шва (●) (0,018% Р, 0,04% Си) и основного металла (O) (0,021% Р, 0,08% Си) корпуса ВВЭР-440

Базы данных, использованные в настоящей работе, формировались по результатам испытаний образцов-свидетелей пяти блоков ВВЭР-440/213: 2-й блок Армянской АЭС, 3-й и 4-й блоки Кольской АЭС и первые два блока Ровенской АЭС (РАЭС-1 и РАЭС-2) (21 экспериментальная точка для материала сварных швов). Время обучения образцов составило 8... 100 тыс. ч.

Фосфор и медь являются элементами, определяющими радиационную стойкость материалов корпусов реакторов ВВЭР-440 [1, 2, 4], (содержание никеля в этих материалах пренебрежимо мало). Содержание меди в материалах образцов-свидетелей ВВЭР-440/213 изменяется в значительно более широких пределах (0,03...0,18% – в 6 раз), чем содержание фосфора (0,01...0,028 – в 2,8 раз).

Соотношения (2.2) и (2.3) в настоящее время приняты в качестве нормативных, т.е. по определению должны быть консервативными для любой базы экспериментальных данных. Как уже отмечалось, при разработке нормативных зависимостей были использованы преимущественно экспериментальные данные, полученные на образцах, облученных в исследовательских реакторах при существенно более высокой плотности нейтронного потока, чем корпус реактора. Возникает вопрос: являются ли данные соотношения консервативными по отношению к базе данных, полученных при испытании образцов-свидетелей и образцов, облученных в энергетических реакторах в рамках исследовательских программ. Сопоставление экспериментальных и расчетных данных, приведенное на рис. 2.2, показывает, что ныне действующие нормативные зависимости не являются консервативными по отношению к новым базам данных, как для материала сварного шва, так и для основного металла. Таким образом, следует провести статистическую обработку новых баз данных и выработать предложения по корректировке нормативных зависимостей.



Рис. 2.2. Сравнение фактических величин радиационного охрупчивания образцов-свидетелей с нормативными [3] для материала сварных швов (а) и основного металла (б)

Одним из основных параметров, использованных для сравнения качества различных моделей, является среднеквадратичное отклонение:

$$\boldsymbol{\sigma} = \sqrt{\sum \left(\Delta T_F^{\text{эксперимент}} - \Delta T_F^{\text{модель}} \right)^2 / (N - M)} \ .$$

Здесь *N* – размер экспериментальной матрицы; *M* – число связей, наложенных на модель. Так, для моделей (2.2) и (2.3) получим:

 $\sigma_{(2.2)} = 34.5 \ ^{\circ}C;$

 $\sigma_{(2.3)} = 32.8 \ ^{\circ}\text{C}.$

Рассмотрим модель, описывающую радиационное охрупчивание сварных швов ВВЭР-440, имеющую вид (2.2):

$$\Delta T_F = A_F F^n = (A_P C_P + A_{Cu} C_{Cu}) F^n, \qquad (2.4)$$

где $A_{\rm P}$, $A_{\rm Cu}$ – коэффициенты регрессии; n – показатель степени.

Из анализа результатов, полученных при испытании материалов сварных швов ВВЭР-440, следует, что выбор показателя степени n = 1/3 для зависимости величины радиационного охрупчивания от флюенса быстрых нейтронов (2.4) на настоящий момент является оптимальным [4]. В связи с этим для материалов сварных швов ограничимся рассмотрением регрессионных моделей с предопределенной зависимостью от флюенса (n = 1/3). В этом случае выражение (2.4) принимает следующий вид:

$$\Delta T_F = A_F F^{1/3} = (A_P C_P + A_{Cu} C_{Cu}) F^{1/3}.$$
(2.5)

Регрессионный анализ результатов, полученных при испытании материала сварных швов, позволил получить следующую зависимость:

$$\Delta T_F = (850 C_P + 43 C_{Cu}) F^{1/3}$$

= 850 (C_P + 0.05 C_{Cu}) F^{1/3} (\sigma = 34,3 °C; R = 0.82) (2.6)

Здесь *R* - коэффициента корреляции. Чем ближе коэффициент корреляции к 1, тем уравнение регрессии лучше описывает взаимосвязь между переменными.

Среднеквадратичные отклонения, определенные для нормативной зависимости (2.2) и регрессионной модели (2.6), почти совпадают ($\sigma_{(2.2)} = 34.5$ °C). Коэффициенты регрессии (2.6) также достаточно близки к нормативным коэффициентам радиационного охрупчивания (2.2).

Многочисленные исследования показали, что с уменьшением содержания фосфора и меди коэффициент радиационного охрупчивания A_F перестает уменьшаться и выходит на некоторый постоянный, но не нулевой, уровень. Другими словами, существуют пороговые уровни влияния фосфора и меди на радиационное охрупчивание. Так, для материалов корпусов реакторов западного типа такими пороговыми уровнями являются 0,008% для фосфора и 0,08% для меди [5]. В [6] пороговый уровень влияния меди на радиационное охрупчивание для материалов корпусов американских реакторов был установлен равным 0,06%. В [4] для материалов сварных швов корпусов реакторов ВВЭР-440 пороговый уровень влияния на радиационное охрупчивание фосфора и меди был установлен равным 0.019 и 0.04% соответственно.

Учесть наличие пороговых уровней влияния фосфора (C_{P_0}) и меди (C_{Cu_0}) на радиационное охрупчивание в рамках линейной модели регрессии можно, преобразовав модель (2.5) к следующему виду:

 $\Delta T_F = A_F F^{1/3} = [A_0 + A_P (C_P - C_{P_0}) + A_{Cu}(C_{Cu^-} - C_{Cu_0})]F^{1/3};$ (2.7) если $C_P < C_{P_0}$, то $C_P = C_{P_0}$; если $C_{Cu} < C_{Cu_0}$, то $C_{Cu} = C_{Cu_0}$.

Как видно из (2.7), условие

 $A_0 = A_P C_{P_0} + A_{Cu} C_{Cu_0}$

фактически означает отсутствие (равенство нулю) свободного члена в коэффициенте радиационного охрупчивания модели (2.7).

Рассмотрим модель (2.7) с нулевым свободным членом в коэффициенте радиационного охрупчивания (или, эквивалентно, модель (2.5) с учетом порогового уровня влияния фосфора и меди на радиационное охрупчивание).

Как видно из рис.2.3, учет порогового уровня влияния фосфора и меди на радиационное охрупчивание сварных швов существенно снижает среднеквадратичное отклонение для модели (2.5). Топология поверхности $\sigma(C_{P_0}; C_{Cu_0})$ не позволяет сделать однозначный выбор C_{Cu_0} для используемой экспериментальной матрицы. Поэтому наиболее оправданным представляется ограничиться выбором только порогового уровня влияния фосфора на радиационное охрупчивание. Отметим, что выбор $C_{Cu_0} \leq$ 0.03% соответствует уравнению регрессии с наименьшим значением σ .



Рис. 2.3. Зависимость среднеквадратичного отклонения σ , для модели (2.7) с $A_0 = A_P C_{P_0} + A_{Cu} C_{Cu_0}$, от пороговых уровней влияния фосфора (C_{P_0}) и меди (C_{Cu_0}) на радиационное охрупчивание

Соответствующее уравнение регрессии будет: $\Delta T_F = (717 C_P + 59 C_{Cu}) F^{1/3}$ = 717 (C_P + 0.083 C_{Cu}) $F^{1/3}$ (σ = 23,7 °C; R = 0,92); (2.8) если $C_P < 0,02\%$, то $C_P = 0,02\%$.

Близость коэффициента корреляции *R* в (2.8) к 1 показывает, что уравнение регрессии (2.8) хорошо описывает взаимосвязь между переменными. Регрессионные коэффициенты уравнений (2.8) и (2.2) достаточно близки. Сравнение фактических величин радиационного охрупчивания образцов-свидетелей материала сварных швов корпусов реакторов ВВЭР-440 с нормативными [3] и результатами расчета по регрессионной модели (2.8) показано на рис.2.4. Визуально из рис.2.4 видно, что модель (2.8) описывает радиационное охрупчивание металла сварных швов корпусов реакторов ВВЭР-440 значительно лучше, чем нормативная зависимость (2.2).

Получим количественную оценку различия качества нормативной зависимости (2.2) и регрессионной модели (2.8). Сравним дисперсии нормативной зависимости (2.2) и регрессионной модели (2.8):

$$\sigma_{(2,2)}^2 / \sigma_{(2,8)}^2 = (34.5/23,7)^2 = 2.119 = F_{0,055}(19,19); F_{0,05}(19,19) = 2,168,$$

где $F_{\alpha}(n_1, n_2)$ – квантили распределения Фишера с уровнем значимости α и степенями свободы n_1 и n_2 . Это означает, что модель (2.8) описывает зависимость радиационного охрупчивания материала сварных ВВЭР-440 от содержания в них меди и фосфора и флюенса быстрых нейтронов лучше, чем нормативная зависимость (2.2), с вероятностью 94,5% \approx 95%. Данное улучшение следует признать статистически значимым. Таким образом, модель (2.8) может рассматриваться в качестве кандидатной для определения фактического радиационного охрупчивания материала сварного шва корпуса реактора.



Рис. 2.4. Сравнение фактических величин радиационного охрупчивания образцов-свидетелей материала сварных швов корпусов реакторов ВВЭР-440 с нормативными [3] (О) и результатами расчета по регрессионной модели (2.8) (●)

Для модели (2.8) 95%-ная верхняя огибающая может быть получена в следующем виде:

$$\Delta T_F^{(2.8)}(95\%) = 40 + A_F^{(2.8)} F^{1/3} (\sigma = 50, 1^{\circ} \text{C})$$
(2.9)

Модель (2.9) является консервативной для всей совокупности элементов, включенных в рассматриваемую базу данных (рис. 2.5) и может быть использована для консервативной оценки радиационного охрупчивания материала сварного шва корпуса реактора.



Рис. 2.5. Сравнение фактических величин радиационного охрупчивания образцов-свидетелей материала сварных швов корпусов реакторов ВВЭР-440 с результатами расчета по регрессионной модели

(2.8) (●) и консервативной модели (2.9) (Д)

3. РАДИАЦИОННОЕ ОХРУПЧИВАНИЕ МАТЕРИАЛОВ КОРПУСОВ РЕАКТОРОВ ВВЭР-1000

Госатомнадзор России устанавливает нормативную зависимость для расчета радиационного повреждения материалов корпусов ВВЭР-1000 в следующем виде [3]:

$$\Delta T_F = A_F F^{1/3} ,$$

где F – флюенс быстрых нейтронов в единицах 10²² м⁻² (E ≥ 0,5 МэВ).

Приняты следующие нормативные зависимости [3]:

для материала сварных швов:

 $\Delta T_F = 20 F^{1/3}$, °С; для основного металла – стали марки 15Х2НМ-ФАА:

$\Delta T_F = 23 F^{1/3}$, °C.

Следует отметить, что нормативная зависимость для определения темпа изменения критериального параметра, например, ΔT_F , должна, в частности, удовлетворять условию консервативности для безопасности эксплуатации АЭС, как это принято в США и других странах. Консервативность зависимости предполагает, что графически она должна располагаться не ниже точек массива данных, на основе которых создается. Однако в работах [7, 8] было показано, что в некоторых случаях зависимости (3.2) и (3.3) не обеспечивают консервативную оценку радиационного охрупчивания материалов корпусов ВВЭР-1000 (рис. 3.1). Цель настоящей работы состояла в том, чтобы на базе имеющейся в настоящее время экспериментальной информации о радиационном охрупчивании материалов корпусов ВВЭР-1000 разработать такие функциональные зависимости, которые в наибольшей мере удовлетворяли бы требованиям, предъявляемым к нормативным зависимостям.



Рис. 3.1. Сравнение фактического радиационного охрупчивания (●) материала образцов-свидетелей сварного шва (1,76% Ni, 0,01% P, 0,04% Си) корпуса BBЭP-1000 с нормативным (----)

Использование данных, полученных при облучении материалов корпусов реакторов в исследовательских реакторах, для анализа закономерностей радиационного охрупчивания в большинстве случаев некорректно из-за разницы в температурно-временных и нейтронно-физических параметрах облучения, в первую очередь, - в температуре облучения, плотности потока и спектре быстрых нейтронов, а также внутренней поверхности корпуса реактора. Исключение составляют данные, которые получены при облучении в установке КОРПУС, разработанной в НИИАРе [9]. Отмеченная в [7, 8] неконсервативность зависимостей, принятых Госатомнадзором России, в основном, связана с использованием данных, полученных при облучении материалов в исследовательских реакторах. В настоящей работе для статистического анализа использовали наиболее надежные данные, полученные на образцах-свидетелях материалов корпусов ВВЭР-1000, которые облучали потоком нейтронов с малой плотностью. По остальным параметрам программы образцов-свидетелей материалов корпусов ВВЭР-1000 следует считать представительными.

Данные, полученные в рамках исследовательских программ по облучению образцов в энергетических реакторах, в анализе не использовали. В первую очередь, это связано с тем, что в них образцы облучались в потоке нейтронов с плотностью в 50... 1000 раз больше, чем на внутренней поверхности корпуса реактора (другими словами, фактор опережения составлял 50...1000). Столь высокий фактор опережения объясняется конструктивными особенностями реактора. Отметим, что для образцов-свидетелей материалов корпусов ВВЭР-1000 фактор опережения изменяется примерно от 0,8 до 8.

В проведенном в настоящей работе анализе были использованы результаты исследования образцовсвидетелей первых блоков Балаковской, Калининской и Южно-Украинской АЭС, 2-го и 3-го блоков Запорожской АЭС, 5-го блока Нововоронежской АЭС, 3-го блока Ровенской АЭС (22 экспериментальных точки для материала сварных швов). Химический состав образцов-свидетелей материалов корпусов ВВЭР-1000 характеризуется низким по сравнению с ВВЭР-440 содержанием меди и фосфора и высоким содержанием никеля (в некоторых сварных швах до 1,9%). Плотность потока нейтронов изменялась для разных образцов от 1,9 $\cdot 10^{14}$ до 2,3 $\cdot 10^{15}$ м⁻²c⁻¹. Время облучения изменялось от 14 до 45 тыс. ч. Флюенс нейтронов – от 1,5 $\cdot 10^{22}$ до 1,8 $\cdot 10^{23}$ м⁻².

Следует отметить, что в ныне принятых нормативных зависимостях [3] не учитывается содержание в стали никеля. В то же время имеется достаточное число достоверных данных, позволяющих сделать вывод о значительном усилении радиационного охрупчивания при повышении его содержании в стали более 1...1,3% (рис. 3.2) [10, 11].



Рис.3.2. Зависимость радиационно-индуцированного сдвига температуры вязкохрупкого перехода от содержания в стали никеля для материалов корпусов реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000

На рис.3.3 сравнивается радиационно-инду-цированный сдвиг температуры вязкохрупкого перехода, определенный экспериментально по результатам испытаний образцов-свидетелей и рассчитанный при использовании действующих в настоящее время нормативных зависимостей радиационного охрупчивания материалов корпусов реакторов [3], т.е. по уравнениям (3.2) и (3.3).



Рис.3.3. Сравнение фактических величин радиационного охрупчивания образцов-свидетелей материала сварных швов (а) и основного металла (б) корпусов BBЭP-1000 с нормативными

Как следует из рис.3.3, нормативные зависимости не являются консервативными и должны быть пересмотрены.

Для моделей (3.2) и (3.3) получены следующие значения **о**:

$$\sigma_{(3.2)} = 18,3 \text{ °C};$$

 $\sigma_{(3.3)} = 21,3 \text{ °C};$

Регрессионный анализ данных по образцам-свидетелям показал, что для материала сварных швов и основного металла корпусов ВВЭР-1000 показатель степени n = 1/3 является удовлетворительной оценкой степени зависимости радиационно-индуцированного сдвига критической температуры хрупкости от флюенса быстрых нейтронов.

Исследование выявило значительное усиление радиационного охрупчивания сварных швов ВВЭР-

1000 с повышением содержания в стали никеля и марганца:

$\Delta T_F = 20,3 F^{1/3} (\sigma = 18,3 \text{ °C}, R = 0);$									(3.4)		
$\Delta T_F =$	13,2 (3.5)	$C_{\rm Ni}$	$F^{1/3}$	(σ	=	14,2	°C,	R	=	0,19);	
$\Delta T_F =$	25,0 (3.6)	C_{Mn}	$F^{1/3}$	(σ	=	14,1	°C,	R	=	0,20);	

Здесь R — коэффициент линейной корреляции, показывающий, насколько хорошо уравнение описывает взаимосвязь между переменными. Приближение коэффициента R к нулю показывает, что между зависимой и независимыми переменными линейная корреляция отсутствует.

Линия регрессии (3.4) совпадает с нормативной зависимостью (3.2). Равенство коэффициента корреляции модели (3.4) нулю означает, что данная модель отражает взаимосвязь между переменными неверно. Сравнение дисперсии регрессионной модели (3.4) с дисперсией моделей (3.5) и (3.6) показывает, что учет влияния химического состава стали на радиационное охрупчивание приводит к значительному улучшению модельной оценки:

$$\sigma_{(3,4)}^2 / \sigma_{(3,5)}^2 = (18,3/14,2)^2 = 1,67 = F_{0,12}(21,21),$$

$$\sigma_{(3,4)}^2 / \sigma_{(3,6)}^2 = (18,3/14,1)^2 = 1,67 = F_{0,12}(21,21),$$

где $F_{\alpha}(n_1, n_2)$ – квантили распределения Фишера с уровнем значимости α и степенями свободы n_1 и n_2 . Если отношение дисперсий двух моделей больше F_{α} , то разница между ними может считаться значимой с вероятностью (1– α)·100%.

Определение действительного вклада марганца в радиационное охрупчивание затруднено наличием положительной корреляции между содержанием марганца и никеля в рассматриваемых материалах сварных швов (рис. 3.4):

$$C_{Ni} = 1.0 + 0.80C_{Mn} (\sigma = 0.1\%, R = 0.85).$$

Для всех точек: $C_{Ni} = 1.1 + 0.6C_{Mn}$ ($\sigma = 0.2\%$, R=0.5).



Рис. 3.4. Корреляции между содержанием марганца и никеля в рассматриваемых материалах сварных швов ВВЭР-1000

Линейная суперпозиция никеля и марганца не приводит к улучшению модельной оценки радиационного охрупчивания:

$$\Delta T_F = (6,60C_{\rm Ni} + 12,8C_{\rm Mn}) F^{1/3} (\sigma = 13,9^{\circ}C, R = 0,35).$$
(3.7)

В то же время учет никеля и марганца в виде произведения значительно улучшает модель:

$$\Delta T_F = 15,5 C_{\rm Ni} C_{\rm Mn} F^{1/3} (\sigma = 10,4 \,^{\circ}\text{C}, R = 0,69).$$
(3.8)

Модель (3.8) лучше, чем модель (3.7) с вероятностью ~90%:

$$\sigma_{(3.7)}^2 / \sigma_{(3.8)}^2 = (13,9/10,4)^2 = 1,79 = F_{0,1}(20,21).$$

Возможно, наблюдаемое влияние марганца на радиационное охрупчивание сварных швов ВВЭР-1000 носит случайный характер и является следствием положительной корреляции между содержанием марганца и никеля в рассматриваемых материалах. Отметим наличие положительной корреляции между концентрацией никеля, хрома и молибдена в рассматриваемых материалах сварных швов:

$$C_{\rm Cr} = 1,17 + 0,32C_{\rm Ni} \ (\sigma = 0,06\%, R = 0,81),$$

 $C_{\rm Mo} = 0,49 + 0,09C_{\rm Ni} \ (\sigma = 0,03\%, R = 0,57).$

Поэтому введение в коэффициент радиационного охрупчивания зависимости от содержания в материале хрома и молибдена также нецелесообразно. В связи с этим наиболее обоснованным представляется рассмотрение моделей, согласующихся с установленным ранее выводом, согласно которому радиационное охрупчивание легированной никелем стали определяется содержанием в ней никеля.

Анализ результатов испытаний образцов-свидетелей показывает, что зависимость радиационного охрупчивания от содержания в стали никеля носит нелинейный характер, близкий к кубической параболе:

$$\Delta T_F = 4,70 \ C_{\text{Ni}}^3 \ F^{1/3} \ (\sigma = 10,7 \ ^\circ\text{C}, R = 0,63). \tag{3.9}$$

Модель (3.9) лучше нормативной зависимости (3.2) с вероятностью 99%:

$$\sigma^{2}_{(3,2)} / \sigma^{2}_{(3,9)} = (18,3/10,7)^{2} = 2,94 = F_{0,01}(21,21).$$

Введение свободного члена в коэффициент радиационного охрупчивания модели (3.9) не приводит к значимому улучшению модели. Модель (3.9) может быть улучшена введением в химический фактор зависимости от содержания в стали марганца, хрома и молибдена:

$$\Delta T_F = 9,02 C_{\text{Ni}}^2 C_{\text{Mn}} F^{1/3} (\sigma = 9,4 \text{ °C}, R = 0,76); \qquad (3.10)$$

$$\Delta T_F = 5,27 \ C_{\rm Ni}^2 \ C_{\rm Mn} \ C_{\rm Cr} \ F^{1/3} \ (\sigma = 9,2 \ ^{\circ}{\rm C}, \ R = 0,77); \qquad (3.11)$$

$$\Delta T_F = 5,90 \ C_{\rm Ni}^2 \ C_{\rm Mn}/C_{\rm Mo} \ F^{1/3} \ (\sigma = 9,2 \ ^{\circ}{\rm C}, R = 0,77); \quad (3.12)$$

$$\Delta T_F = 3,45 \ C_{\text{Ni}}^2 \ C_{\text{Mn}} C_{\text{Cr}} / C_{\text{Mo}} \ F^{1/3} \ (\sigma = 9,1 \ ^{\circ}\text{C}, R=0,78) \ (3.13)$$

$$\Delta T_F = 2,43 C_{\text{Ni}} (C_{\text{Mn}} C_{\text{Cr}} / C_{\text{Mo}})^2 F^{1/3} (\sigma = 9,1 \text{ °C}, R = 0,7 (3.14)$$

Однако это улучшение не является статистически значимым и может, по крайней мере частично, являться следствием положительной корреляции между концентрацией стали этих элементов и никеля. Поэтому, несмотря на то, что модели (3.10)... (3.14) лучше, модель (3.9) может считаться предпочтительной и рассматриваться в качестве кандидатной для оценки фактического радиационного охрупчивания материала сварных швов корпусов BBЭP-1000.

В качестве базы для разработки новой нормативной зависимости может быть предложена 95%-ная верхняя огибающая линии регрессии (3.9). Верхняя огибающая для корреляционной зависимости может быть выбрана двумя различными стандартными способами (рис.3.5). Один способ состоит в смещении исходной корреляционной зависимости (кривая *l* на рис. 3.5) на некоторую величину (кривая *2* на рис. 3.5):

$$\Delta T_F = A_F F^{1/3} + \text{const.}$$

Этот способ выбран в нормативных зависимостях для материалов корпусов американских реакторов. Второй способ состоит в увеличении химического фактора уравнения (3.1) (кривая 1 на рис. 3.5 переходит в кривую 3). В этом случае расстояние между корреляционной зависимостью ее верхней огибающей увеличивается с флюенсом. Таким образом, при малом флюенсе верхняя огибающая, построенная вторым способом, будет ниже верхней огибающей, построенной первым способом, и станет выше ее с увеличением флюенса. Ввиду того, что ресурсный флюенс в несколько раз больше, чем максимальный, до которого были облучены рассматриваемые образцы-свидетели, целесообразным представляется принятие в качестве нормативной зависимости верхней огибающей модели (3.9), построенной вторым способом:

$$\Delta T_F = (4,7 C_{Ni}^3 + 10,5) F^{1/3} (\sigma = 22,3 \text{ °C}).$$
(3.15)



Рис.3.5. Схема выбора верхней огибающей (2 и 3) для корреляционной модели (3.1)

Как видно из рис.3.6, модель (3.9) оценивает радиационное охрупчивание материала сварных швов ВВЭР-1000 значительно лучше нормативной зависимости (3.2). Модель (3.15) консервативна для всех рассмотренных точек.



Рис.3.6. Сравнение действительных величин радиационного охрупчивания материала образцов-свидетелей сварных швов корпусов ВВЭР-1000 с результатами расчета по моделям (3.2) (O), (3.9) (●) , (3.15) (+)

4. ПОВТОРНОЕ РАДИАЦИОННОЕ ОХРУПЧИВАНИЕ

Эффективность пострадиационного отжига и, следовательно, продолжительность службы материалов корпусов реакторов, находящихся в эксплуатации после отжига, определяется двумя факторами:

- остаточным радиационным охрупчиванием:

 $\Delta T_{\text{oct}} = T_{\text{kA}}$ - T_{k0} ,

где T_{kA} - критическая температура хрупкости стали после отжига;

 - сдвигом температуры хрупкости в процессе повторного охрупчивания: $\Delta T_{kR} = T_{kR} - T_{kA}$

где $T_{\mbox{\tiny kR}}$ - критическая температура хрупкости стали после повторного облучения.

В настоящее время существуют три модели для охрупчивания при повторном облучении:

(I) Начальная скорость охрупчивания (d∆T/dF) во время повторного облучения, по крайней мере, не выше, чем начальная скорость во время облучения до отжига. В соответствии с этим, верхним пределом для кинетики охрупчивания во время повторного облучения является "консервативная" схема (обозначается литерой С). Согласно этой схеме скорость охрупчивания одинакова для первичного и для повторного облучений:

$$T_{kR} = T_{k0} + \Delta T_{ocr} + A_F \times \Delta F_R^{1/3},$$

$$\Delta F_R = F_R - F_I,$$

$$\Delta T_{kR} = A_F \Delta F_R^{1/3},$$

где A_F – коэффициент радиационного охрупчивания;

F₁ – коэффициент флюенса нейтронов, воздействовавших на материал до отжига;

 ΔF_R – приращение флюенса нейтронов при повторном облучении.

В Российских нормативных документах указано следующее уравнение для оценки A_F металла сварных швов корпусов реакторов ВВЭР-440 [3]:

 A_F (CIII BB \exists P-440) = 800 (P + 0.07Cu),

где Р и Си–содержание меди и фосфора в вес.%, при этом A_F предполагается одинаковым как при первичном облучении, так и после отжига.

В то же время в соответствии с [3] А_F основного металла корпусов реакторов ВВЭР-440 не зависит от содержания меди и фосфора:

 $A_{\rm F}$ (OM BB P-440) = 18

"Консервативная" схема применялась в России для определения срока службы корпусов реакторов после отжига, начиная с 1987 г. Однако этот подход, будучи несомненно консервативным, противоречит существующим физическим представлениям о механизмах охрупчивания и отжига, так как предполагает полное восстановление при отжиге структуры и свойств материала, что не достигается при любом режиме отжига.

(II) Второй подход базируется на предположении, что скорость повторного охрупчивания вряд ли ниже скорости первичного радиационного охрупчивания при флюенсе нейтронов, соответствующем моменту отжига. Это нижний предел для кинетики охрупчивания при повторном облучении, известный как вертикальный сдвиг (обозначается литерой V). В соответствии с методом вертикального сдвига:

$$T_{kR} = T_{k0} + \Delta T_{ocr} + A_F \times (F_R^{1/3} - F_I^{1/3})$$
$$\Delta T_{kR} = A_F \times (F_R^{1/3} - F_I^{1/3}).$$

(III) Промежуточный, между "консервативной" схемой и вертикальным сдвигом – подход к радиационному охрупчиванию при повторном облучении – модель горизонтального сдвига (обозначается литерой L). В соответствии с этой моделью предполагается, что начальная скорость радиационного охрупчивания при повторном облучении соответствует скорости охрупчивания в первичном процессе, начиная с точки, в которой сдвиг критической температуры равен остаточному сдвигу критической температуры хрупкости:

 $T_{kR} = T_{k0} + A_F \times \{(\Delta T_{ocr} / A_F)^3 + \Delta F_R\}^{1/3} = T_{k0} + \{\Delta T_{ocr}^3 + A_F^3 \Delta F_R\}^{1/3}$



Рис.4.1. Сравнение экспериментальных результатов про повторному радиационному охрупчиванию материалов корпусов реакторов ВВЭР-440 с расчетами по модели горизонтального сдвига

Необходимо отметить, что модель горизонтального сдвига по сути является не моделью повторного радиационного охрупчивания материалов корпусов реакторов, а верхней огибающей, консервативной оценкой кинетики повторного облучения. Анализ показывает [13], что действительная кинетика повторного радиационного охрупчивания материалов корпусов реакторов с повышенным содержанием фосфора и меди лежит значительно ниже модели горизонтального сдвига (рис. 4.2).



Рис.4.2. Сравнение экспериментальных и расчетных величин повторного радиационного охруп-

 $\Delta T_{kR} = (\Delta T_{ocr}^3 + A_F^3 \times \Delta F_R)^{1/3} - \Delta T_{ocr}.$

Модель горизонтального сдвига является физически наиболее оправданной, и именно она используется в принятой ГАН РФ "Методике определения критической температуры хрупкости металла корпуса реактора при эксплуатации после его отжига" (ИЦП МАЭ, Инв. № МКТ-02-98. Москва, 1998).

Более того, консервативность модели горизонтального сдвига была подтверждена для материалов корпусов реакторов 1-го и 2-го блока Кольской АЭС, 3-го и 4-го блоков Нововоронежской АЭС, 1го и 2-го блоков АЭС Козлодуй и всех остальных исследованных материалов (рис. 4.1).

чивания материалов корпусов реакторов ВВЭР-440 [13]

Наиболее надежными данными по радиационному охрупчиваню материалов корпусов реакторов ВВЭР-440 после второго пострадиационного отжига являются результаты исследовательской программы, опубликованы в [12], и результаты исследования материала темплетов, вырезанных из корпуса реактора 3-го блока Нововоронежской АЭС. Эти данные свидетельствуют о том, что модель горизонтального сдвига оценивает радиационное охрупчивание материалов корпусов реакторов ВВЭР-440 после второго отжига консервативно.

Наиболее надежными данными по радиационному охрупчиваню материалов корпусов реакторов ВВЭР-440 после второго пострадиационного отжига являются результаты исследовательской программы, опубликованы в [12], и результаты исследования материала темплетов, вырезанных из корпуса реактора 3-го блока Нововоронежской АЭС. Эти данные свидетельствуют о том, что модель горизонтального сдвига оценивает радиационное охрупчивание материалов корпусов реакторов ВВЭР-440 после второго отжига консервативно.

ЛИТЕРАТУРА

- Н.Н.Алексеенко, А.Д.Амаев, И.В.Горынин, В.А.Николаев. Радиационное повреждение стали корпусов водо-водяных реакторов. М.: «Энергоиздат», 1981, 191 с.
- J.R.Hawthorne Irradiation embrittlement. //Treatise on Materials Science and Technology, C.L. Briant and S.K. Bunerji, Eds., 1983, v.25, p.461–524.
- Нормы расчёта на прочность оборудования и трубопроводов атомных энергетических установок (ПНАЭ Г-7-002-86), М.: «Энергоатомиздат», 1989.
- А.В.Николаева, Ю.А.Николаев, Ю.Р.Кеворкян. Экспериментально-статистический анализ ра-диационного охрупчивания материалов корпусов ВВЭР-440 //Атомная энергия, 2001, т.90, вып.4, с.260–267.
- 5. U.S. NRC Regulatory Guide 1.99, Rev. 1, 1977.

- 6. Standard Guide for Prediction Neutron Radiation Damage to Reactor Vessel Materials. E706 (IIF), ASTM E900-98.
- A.M.Kryukov, Yu.A.Nikolaev, T.Planman, P.A.Platonov. Basic results of the Russian WWER-1000 surveillance program //Nuclear Engineering and Design., 1997, v.173, p.333 – 339.
- А.В.Николаева, Ю.А.Николаев, Ю.Р.Кеворкян/ Радиационное охрупчивание материалов корпусов ВВЭР-1000 //Атомная энергия, 2001, т.90, вып.5, с.359–366.
- V.N.Golovanov, N.V.Markina, V.M.Raetsty, S.V.Seriodkin, V.ATsukanov. Irradiation of vessel materials using KORPUS facility of RBT-6 reactor //*Effects of Radiation on Materials*, ASTM STP 1325,

R.K.Nanstad, M.L.Hamilton, F.A.Garner and A.S.Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1999, p.233–245.

- Yu.A.Nikolaev, A.V.Nikolaeva, A.MKryukov. The nickel effect on mechanical property recovery under post-irradiation annealing //Fourth International Conference on Material Science Problems in NPP Equipment Production and Operation, St. Petersburg, Russia, 1996, v.1, p.231–235.
- M.Davies, A.Kryukov, C.English, Yu.Nikolaev East /West steels for reactor pressure vessels. //Irradiation Effects and Mitigation. Proc. of the IAEA Speci-alists Meeting held in Vladimir, Russian Federation, 1997, IWG–LMNPP–97/2, p.42–61.
- 12. J.Kohopää. Effects of post-irradiation thermal annealing on radiation embrittlement behavior of Cr-Mo-V alloyed weld metals. //Acta Polytechnica Scandinavica, Mechanical Engineering Series, 1998, N132, 112 p.
- 13. P.A.Platonov, Yu.A.Nikolaev, Ya.I.Shtrombakh. Radiation Embrittlement Kinetics of the Firsts Generation of VVER-440 RVPs After Post-irradiation Annealing. //IAEA Specialist Meeting on Irradiation Embrittlement and Mitigation. Gloucester, May 14th - 17th, 2001.