## *РАЗДЕЛ ВТОРОЙ* МАТЕРИАЛЫ РЕАКТОРОВ НА ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНАХ

УДК 621.039.53

### РАДИАЦИОННОЕ ОХРУПЧИВАНИЕ КОРПУСНЫХ СТАЛЕЙ С РАЗЛИЧНЫМ СОДЕРЖАНИЕМ НИКЕЛЯ

# Э.У. Гриник, В.Н. Ревка, Л.И. Чирко, Ю.В. Чайковский Институт ядерных исследований НАН, г. Киев, Украина

Выполнен анализ результатов испытаний образцов-свидетелей металла корпусов реакторов BBЭР-1000 АЭС Украины (~9 лет облучения). Данные по вязкости разрушения для корпусных материалов были переоценены с помощью методологии Мастер кривой. Показано, что степень радиационного охрупчивания сварных швов с повышенным содержанием никеля (> 1,5 %) и марганца (> 0,8 %) больше нормативной величины. Кроме того, сделан вывод, что сдвиг критической температуры хрупкости вследствие облучения  $\Delta$  $T_{\rm F}$  может недооценивать сдвиг кривой вязкости разрушения. Продемонстрировано, что нормативный подход ПНАЭ Г-7-002-86 чрезмерно консервативно характеризует вязкость разрушения некоторых корпусных материалов в исходном состоянии.

#### введение

Контроль за состоянием корпусных материалов реакторов типа ВВЭР-1000 с помощью образцовсвидетелей (ОС) является неотъемлемой частью научно-технического сопровождения безопасной эксплуатации АЭС Украины. Всесторонний анализ данных, полученных при испытании ОС 1-х сроков освидетельствования металла корпусов реакторов (КР) показал негативное влияние никеля на радиационную стойкость сварных швов [1], повышенное содержание которого может приводить к ускоренному охрупчиванию по сравнению с проектной величиной.

За последние годы стали доступными результаты испытаний ОС 2-х сроков освидетельствования металла КР (~ 9 лет облучения), что расширило массив данных для анализа. Кроме того, появилась возможность корректно определять вязкость разрушения корпусных материалов до и после облучения (следовательно, степень их охрупчивания) с помощью ОС, используя достижения экспериментальных методов механики разрушения.

Согласно нормативному подходу ПНАЭ Г-7-002-86 [2], принятому в Украине, оценка статической трещиностойкости (вязкости разрушения) корпусных материалов основана на результатах ударных испытаний стандартных образов Шарпи. Следовательно, нормативный подход оценивает трещиностойкость материалов косвенным путем. Применение статистической методологии Мастер кривой позволяет непосредственно определять вязкость разрушения материалов.

Согласно исследованиям К. Wallin [3], для корпусных материалов реакторов западного типа нормативный подход дает чрезмерно консервативную оценку вязкости разрушения. Кроме того, анализ базы данных ASME (Американское общество инженеров и механиков) показал, что использование методологии Мастер кривой существенно улучшает определение вязкости разрушения материалов.

Целью настоящей работы было сравнение различных подходов к оценке исходного состояния и степени радиационного охрупчивания корпусных материалов реактора типа ВВЭР-1000 с помощью образцов-свидетелей.

#### ИССЛЕДУЕМЫЕ МАТЕРИАЛЫ И ОБРАЗЦЫ

В текущий анализ были включены корпусные стали марки 15Х2НМФАА, применяющиеся для изготовления корпусов реакторов типа ВВЭР-1000, а также их сварные соединения. В таблице показано содержание основных легирующих элементов и вредных примесей в основном металле (ОМ) обечаек и металле сварного шва (СШ).

Рассматриваемые материалы являются исключительно чистыми в отношении меди и фосфора. В тоже время сварные швы имеют повышенное содержание никеля и марганца, что увеличивает их чувствительность к нейтронному облучению, не смотря на крайне малую концентрацию атомов Си и Р. Самое высокое содержание никеля и марганца имеет сварной шов КР блока № 1 Хмельницкой АЭС.

Экспериментальные данные были получены при испытании ОС для 8-ми корпусов реакторов АЭС Украины: блок № 1 Хмельницкой АЭС (ХАЭС-1), три блока Южно-Украинской АЭС (ЮУАЭС-1, ЮУАЭС-2 и ЮУАЭС-3) и четыре блока Запорожской АЭС (ЗАЭС-1, ЗАЭС-3, ЗАЭС-4 и ЗАЭС-5). Анализ основан на результатах ударных испытаний стандартных образцов Шарпи и статических испытаний образцов на развитие трещины типа СОD.

Образцы были облучены в промышленных реакторах потоком нейтронов плотностью порядка 10<sup>15</sup>нейтр/(м<sup>2</sup>с), который является типичным для условий облучения стенки КР типа ВВЭР-1000.

Флюенс быстрых нейтронов (E > 0,5 МэВ) был в диапазоне (3,6...33,5)·10<sup>22</sup> нейтр/м<sup>2</sup>, а температура облучения образцов ~ 300 °С.

Блок	Содержание, вес. %							
	Ni	Mn	Cu	Р	Ni	Mn	Cu	Р
	Основной метал				Металл сварного шва			
ХАЭС-1	1,12	0,48	0,06	0,007	1,88	0,97	0,02	0,006
ЮУАЭС-1	1,17	0,46	0,05	0,008	1,70	0,94	0,04	0,007
ЮУАЭС-2	1,19	0,44	0,12	0,016	1,74	0,93	0,05	0,012
ЮУАЭС-3	1,12	0,35	0,05	0,008	1,72	0,74	0,06	0,005
ЗАЭС-1	1,20	0,48	0,08	0,007	1,10	0,78	0,03	0,005
ЗАЭС-З	1,10	0,43	0,05	0,007	1,55	0,67	0,05	0,007
ЗАЭС-4	1,34	0,41	0,07	0,010	1,70	0,65	0,06	0,009
ЗАЭС-5	1,28	0,51	0,05	0,008	1,60	0,86	0,08	0,009

Содержание основных легирующих элементов и вредных примесей в корпусных материалах

#### СПОСОБЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ РАДИАЦИ-ОННОГО СДВИГА КРИТИЧЕСКОЙ ТЕМ-ПЕРАТУРЫ ХРУПКОСТИ

Нормативный документ ПНАЭ Г-7-002-86 предписывает определять сдвиг критической температуры хрупкости  $T_{\rm K}$  с помощью ударных испытаний образцов Шарпи, что косвенно характеризует сдвиг кривой вязкости разрушения. Кроме образцов Шарпи в контейнерных сборках облучаются образцы типа COD (образцы Шарпи с выращенной усталостной трещиной), испытание которых в соответствии с методологией Мастер кривой позволяет непосредственно оценивать сдвиг кривой вязкости разрушения.

В первом случае данные испытаний образцов Шарпи аппроксимируют функцией гиперболического тангенса вида

$$KCV = \left(\frac{USE}{2}\right) \cdot \left(1 + \tanh\left(\frac{T - T_0}{C}\right)\right), \quad (1)$$

где KCV – работа разрушения; USE – величина верхнего шельфа кривой Шарпи; T – температура испытаний;  $T_0$  – температура, соответствующая значению ударной вязкости  $\frac{USE}{2}$ ; C – параметр, характери-

зующий наклон температурной зависимости *KCV*. Температура хрупковязкого перехода соответствует выбранному критериальному уровню работы разрушения, который зависит от предела текучести материала. Радиационный сдвиг  $\Delta T_{\rm F}$  определяется как разница между переходными температурами материала в исходном состоянии и после облучения.

Согласно методологии Мастер кривой, значения критического коэффициента интенсивности напряжений  $K_{\rm JC(0,4T)}$  для образцов COD толщиной  $B_{0.4T} = 10$  мм с учетом требований деформационного критерия стандарта ASTM E1921 [4] пересчитываются на толщину 25,4 мм с помощью соотношения:

$$K_{JC(1T)} = K_{\min} + \left(K_{JC(0.4T)} - K_{\min}\right) \cdot \left(\frac{B_{0.4T}}{B_{1T}}\right)^{1/4}$$
(2)

где  $K_{\rm JC(1T)}$  – коэффициент интенсивности напряжений для образцов толщиной  $B_{1T} = 25,4$  мм;  $K_{\rm min} = 20$  МПа $\sqrt{\rm M}$  – минимальное значение вязкости разрушения для ферритных сталей.

После размерной корректировки определяют переходную температуру  $T_0$  с помощью метода максимального правдоподобия, численно решая следующее уравнение:

$$\sum_{i=1}^{n} \frac{\delta_{i} \cdot \exp\left(0.019 \cdot (T_{i} - T_{0})\right)}{11 + 77 \cdot \exp\left(0.019 \cdot (T_{i} - T_{0})\right)} - \sum_{i=1}^{n} \frac{\left(K_{JC}^{i} - 20\right)^{4} \cdot \exp\left(0.019 \cdot (T_{i} - T_{0})\right)}{\left(11 + 77 \cdot \exp\left[0.019 \cdot (T_{i} - T_{0})\right]\right)^{5}} = 0 , \qquad (3)$$

где символ Кронекера  $\delta_i = 1$ , если значение  $K_{\rm JC}$  корректное и  $\delta_i = 0$ , если значение  $K_{\rm JC}$  не удовлетворяет требованию деформационного критерия стандарта ASTM E1921. Фактически процедура вычисления температуры  $T_0$  сводится к совмещению Мастер кривой, уравнение которой имеет вид  $K_{JC} = 30 + 70 \exp \left[ 0.019 \left( T - T_o \right) \right]$ , с экспериментально полученной температурной зависимостью величины  $K_{\rm JC(1T)}$ , после чего  $T_0$  определяется

как температура, соответствующая уровню  $K_{\rm JC(1T)} = 100 {\rm M}\Pi {\rm a}\sqrt{\rm m}$ . Радиационный сдвиг  $\Delta T_0$  равен разнице между температурами  $T_0$  материала в исходном состоянии и после облучения. Поскольку методология Мастер кривой использует аппарат математической статистики, для данных  $K_{\rm JC}$  могут быть определены 95 % верхней и 5 % нижней доверительной границы.

#### РАДИАЦИОННОЕ ОХРУПЧИВАНИЕ МЕ-ТАЛЛА СВАРНЫХ ШВОВ

ВОПРОСЫ АТОМНОЙ НАУКИ И ТЕХНИКИ. 2005. № 3. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (86), с. 73-77.

#### С ПОВЫШЕННЫМ СОДЕРЖАНИЕМ НИКЕЛЯ

Для анализа степени радиационного охрупчивания (РО) металла шва КР были использованы данные по ОС для энергоблоков ХАЭС-1, ЮУАЭС-3, ЗАЭС-4, ЗАЭС-5 (два срока освидетельствования металла КР) и ЮУАЭС-1 (три срока освидетельствования). Результаты механических испытаний ОС для блоков ЗАЭС-4, ЗАЭС-5 и ЮУАЭС-1 (кроме 3-й выгрузки) взяты из отчетов РНЦ "Курчатовский институт" (Россия).

Содержание никеля в металле СШ находилось в пределах 1,60...1,88 вес.% Степень охрупчивания материалов, оцененная с помощью различных методов, приведена на рис. 1. Как можно заметить, в обоих случаях нормативная зависимость ПНАЭ не консервативно характеризует экспериментальные данные.



Рис. 1. Степень охрупчивания металла сварных швов с содержанием никеля (1,60...1,88) вес.% (темные символы – Mn > 0,8 вес.%): а – результаты ударных испытаний образцов Шарпи; б – результаты испытаний образцов СОD на вязкость разрушения

Обращает на себя внимание тот факт, что значительная часть точек лежит ниже нормативной кривой охрупчивания с коэффициентом  $A_{\rm F} = 20$  °C, несмотря на повышенное содержание никеля. Мы попытались объяснить полученный результат, рассмотрев совместное влияние никеля и марганца на радиационную чувствительность исследуемых материалов. На рис. 1 данные для швов с содержанием марганца более 0,8 % обозначены темными символами, принимая во внимание вывод работы [5] о том, что, если содержание марганца превышает пороговое значение 0,8%, то скорость РО сварных швов КР типа ВВЭР-1000 больше нормативной величины. В большинстве случаев точки для металла СШ с высоким содержанием марганца лежат выше нормативной зависимости, что согласуется с результатами работы [5] (см. рис. 1).

Кроме того, представляется важным отметить, что прямое определение параметров вязкости разрушения (т.е.  $\Delta T_0$ ) дает более консервативный результат при оценке степени РО по сравнению с величиной  $\Delta T_F$  (см. рис. 1). Верхняя огибающая для данных  $\Delta T_0$  характеризуется коэффициентом  $A_F = 31$  °C, в то время как результаты ударных испытаний образцов Шарпи ( $\Delta T_F$ ) дают верхнюю огибающую, соответствующую значению  $A_F = 24$  °C.

#### СРАВНЕНИЕ НОРМАТИВНОГО ПОДХОДА И МЕТОДОЛОГИИ МАСТЕР КРИВОЙ

В более ранних исследованиях [6] было обнаружено, что степень радиационного охрупчивания металла сварного шва КР блока ХАЭС-1 выше проектной величины. Основной причиной такого поведения материала является повышенное содержание никеля и марганца. Это означает, что металл СШ может ограничить проектный срок службы реактора или вызвать серьезные препятствия для продления срока безопасной эксплуатации КР. С другой стороны, известно [3], что нормативный подход в некоторых случаях чрезмерно консервативно оценивает вязкость разрушения корпусных материалов реакторов PWR западного типа и что применение методологии Мастер кривой дает возможность улучшить оценку вязкости разрушения материалов в необлученном состоянии.

Принимая во внимание вышеприведенную информацию, мы сравнили нормативный подход ПНАЭ Г-7-002-86 и статистический метод Мастер кривой с точки зрения адекватного определения вязкости разрушения металла сварного шва КР блока ХАЭС-1. С этой целью нормативная (проектная) температурная зависимость  $K_{IC}$  была индексирована критической температурой хрупкости  $T_{K0}$ , полученной на основании результатов ударных испытаний стандартных образцов Шарпи. Нормативная кривая  $K_{IC}$  для сварных соединений корпуса реактора типа

Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (86), с. 73-77.

ВВЭР-1000 имеет форму  $[K_{IC}]_3=35 + 53 \cdot \exp[0,0217(T - T_{K0})]$  [2]. Температура  $T_{K0}$  обычно определяется заводом-изготовителем КР при аттестации корпусных материалов.

После статистической переоценки данных по трещиностойкости были получены переходная температура  $T_0$  и 5 %-я доверительная граница Мастер кривой в виде  $K_{JC(0.05)} = 25,4 + 37,8 \exp[0,019(T - T_0)]$ . Дополнительный сдвиг был добавлен к значению  $T_0$ , чтобы учесть погрешность определения температуры  $T_0$ , связанную с небольшим количеством испытанных образцов. Обе кривые вязкости разрушения были сравнены с экспериментальными данными, полученными на образцах типа СОD и приведенными к толщине 25,4 мм (1T). Результаты сравнения показаны на рис. 2.



Рис. 2. Сравнение 5 % доверительной границы Мастер кривой (сплошная линия) и проектной кривой трещиностойкости (пунктирная линия)

Как мы можем видеть, нормативный подход существенно недооценивает измеренную вязкость разрушения по сравнению с Мастер кривой. Сдвиг между кривыми составляет ~ 50 °С. Очевидно, что использование чрезвычайно консервативных данных для оценки целостности КР может привести в итоге к неоправданным ограничениям в режимах работы и сроках службы корпуса реактора. Применение Мастер кривой и температуры  $T_0$ , определенных методами механики разрушения, позволяет решить эту проблему.

#### СРАВНЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНО ОПРЕДЕЛЕННЫХ ВЕЛИЧИН *Т*<sub>к0</sub> И *Т*<sub>0</sub>

В практике прочностных расчетов значения  $T_{\rm K0}$  и  $T_0$  используются как температуры для индексации кривых вязкости разрушения. Другими словами, эти температуры локализуют кривую  $K_{\rm IC}$  для необлученных материалов на температурной оси. Учитывая вышеприведенные результаты для блока ХАЭС-1, а также чтобы понять до какой степени температуры  $T_{\rm K0}$  и  $T_0$  согласуются друг с другом, было проведено сравнение их экспериментальных значений, полученных для корпусных материалов других КР. Из рис. 3, который демонстрирует результаты сравнения, следует, что в большинстве случаев температура  $T_0$  лежит намного ниже, чем  $T_{\rm K0}$ . Кроме того, отличие между  $T_{\rm K0}$  и  $T_0$  существенно меняется от одного материала к другому.



Рис. 3. Сравнение исходной критической температуры хрупкости  $T_{\kappa_0}$  и переходной температуры  $T_0$  для необлученных корпусных материалов реактора BBЭP-1000: основной металл (а) и металл сварного шва (б)

Очевидно, что уровень консерватизма, задаваемый нормативным подходом, также значительно меняется от материала к материалу. Следовательно, величина  $T_{K0}$  является неподходящим параметром в качестве индексирующей температуры для кривой  $K_{IC}$ . В отличие от нормативного подхода метод Мастер кривой позволяет устанавливать одинаковый уровень консерватизма для различных материалов. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основании результатов испытаний образцовсвидетелей была определена степень радиационного охрупчивания корпусных материалов реактора типа ВВЭР-1000 АЭС Украины. Данные по трещиностойкости были переоценены с помощью статистической методологии Мастер кривой. Кроме того, метод Мастер кривой был сравнен с нормативным подходом ПНАЭ Г-7-002-86 с точки зрения адекватной оценки вязкости разрушения корпусных сталей. Результаты анализа позволяют сделать следующие выводы:

- степень радиационного охрупчивания сварных швов КР типа ВВЭР-1000 с повышенным содержанием никеля (> 1,5 %) и марганца (> 0,8 %) больше нормативной величины;
- сдвиг критической температуры хрупкости ΔT<sub>F</sub> может недооценивать сдвиг кривой вязкости разрушения вследствие облучения;
- нормативный подход чрезмерно консервативно характеризует вязкость разрушения металла сварного шва реактора блока ХАЭС-1 в необлученном состоянии по сравнению с Мастер кривой;
- консерватизм, задаваемый нормативным подходом, значительно меняется от материала к материалу, следовательно, величина *T*<sub>K0</sub> является неподходящим параметром в качестве индексирующей температуры для кривой *K*<sub>IC</sub>.

#### ЛИТЕРАТУРА

1.A.M. Kryukov, Yu.A. Nikolaev. The properties of WWER-1000 type materials obtained on the basis of a surveillance program *//Nucl. Eng. and Design.* 2000, v. 195, p. 143 – 148.

2.ПНАЭ Г-7-002-86. Нормы расчета на прочность оборудования и трубопроводов атомных энергетических установок. Введ. 01.07.87. М.: «Энергоатомиздат», 1989.

3.K. Wallin. Statistical reevaluation of the ASME  $K_{IC}$  and  $K_{IR}$  fracture toughness reference curves //Nucl. Eng. and Design. 1999, v. 193, p. 317–326.

4.ASTM E 1921-97. Standard Test Method for Determination of Reference Temperature, T0, for Ferritic Steels in the Transition Range. ASTM, 1997.

5.A. Kryukov, D. Erak, L. Debarberis, F. Sevini, B. Acosta. Extended analysis of VVER-1000 surveillance data //*Proceedings of the IAEA Specialists Meeting "Irradiation Embrittlement and Mitigation"*, IWG-LMNPP-01/2, 14–17 May 2001, Gloucester, UK. – Vienna (Austria). 2002, p. 285–293.

6.E. Grynik, V. Gukalova, L. Chyrko, V. Revka, A. Ballesteros, L. Debarberis, A.Kryukov. Results from surveillance program and their analysis //*Proc. of the IAEA Specialists Meeting "Irradiation embrittlement and Mitigation"*, IWG-LMNPP-01/2, 14–17 May 2001, Gloucester, UK.–Vienna (Austria). 2002, p. 277–284.

#### РАДІАЦІЙНЕ ОКРИХЧУВАННЯ КОРПУСНИХ СТАЛЕЙ З РІЗНИМ ВМІСТОМ НІКЕЛЮ

#### Е.У. Гринік, В.М. Ревка, Л.І. Чирко, Ю.В. Чайковський

Виконано аналіз результатів випробувань зразків-свідків металу корпусів реакторів ВВЕР-1000 АЕС України (~9 років опромінення). Дані по в'язкості руйнування для корпусних матеріалів були переоцінені за допомогою методології Майстер кривої. Показано, що ступінь радіаційного окрихчування зварних швів з підвищеним вмістом нікелю (> 1,5 %) та марганцю (> 0,8 %) вища за нормативну величину. Крім того, зроблено висновок, що зсув критичної температури крихкості внаслідок опромінення  $\Delta T_F$  може недооцінювати зсув кривої в'язкості руйнування. Продемонстровано, що нормативний підхід ПНАЕ Г-7-002-86 надто консервативно характеризує в'язкість руйнування деяких корпусних матеріалів у вихідному стані.

#### IRRADIATION EMBRITTLEMENT OF REACTOR PRESSURE VESSEL STEELS WITH A DIFFERENT NICKEL CONTENT

#### E.U. Grynik, V.M. Revka, L.I. Chyrko, Yu.V. Chaikovsky

The analysis of the Ukrainian NPP surveillance test results (~ 9 years of exposure) for the VVER-1000 reactor pressure vessel has been performed. Fracture toughness data for the RPV steels have been re-evaluated using the Master curve methodology. It is shown that the irradiation embrittlement rate for welds with a high nickel (> 1,5 % wt) and high manganese (> 0,8 % wt) contents is more than a normative value. Furthermore, the conclusion is made that the critical brittleness temperature shift due to irradiation,  $\Delta T_F$ , may underestimate the fracture toughness curve shift. The PNAE G-7-002-86 normative approach has demonstrated to characterize highly conservatively the fracture toughness of some unirradiated RPV materials.