

## ТЕПЛОВОЕ ОХРУПЧИВАНИЕ СВАРНЫХ СОЕДИНЕНИЙ КОРПУСОВ РЕАКТОРОВ ТИПА ВВЭР

*О.Г. Касаткин*

*Институт электросварки им. Е.О. Патона НАН Украины, Киев, Украина*

*E-mail: kasatkin@paton.kiev.ua факс/тел.+38(044)289-21-96*

Основной причиной ускоренного охрупчивания сварных соединений корпусов реакторов в начальные периоды их эксплуатации является обратимая отпускная хрупкость, вызываемая повышенной концентрацией диффузионно-подвижных примесей, особенно фосфора. Радиационные дефекты кристаллической решетки, создаваемые потоком нейтронов, являются высокоэнергетическими ловушками и снижают концентрацию диффузионно-подвижных примесей. При увеличении флюенса быстрых нейтронов растет плотность дефектов кристаллической решетки, которые способствуют снижению концентрации примесей на границах зерен и соответственно уменьшению отпускной хрупкости.

Корпус реактора (КР) изготавливается из кованых цилиндрических обечаек и днища, которые свариваются под флюсом круговыми швами. Для КР ВВЭР-440 используется сталь 15ХЗМФА, а для ВВЭР-1000 - сталь 15Х2НМФА. Наиболее тяжелые нагрузки на КР возникают в случае аварийной остановки реактора и заполнения его холодной водой (термошоке). Металл КР должен обеспечивать достаточно высокую сопротивляемость развитию возможной (обычно постулируемой) трещины при минимальной температуре термошока.

Состояние металла КР оценивается главным образом критической температурой хрупкости  $T_k$ , при которой обеспечивается заданный уровень трещиностойкости.

Как показали исследования, ресурс корпусов этих реакторов ограничивается свойствами сварных соединений, которые более склонны к охрупчиванию, чем основной металл, в частности из-за повышенной концентрации в шве фосфора (КР ВВЭР-440) или никеля (КР ВВЭР-1000).

Характерными условиями работы активной зоны корпуса реактора являются нейтронное облучение и длительный (сотни тысяч часов) нагрев до 300 °С. Основным механизмом охрупчивания металла КР и сварных швов сводится к накоплению радиационных повреждений кристаллической решетки под действием потока нейтронов. Другим серьезным фактором охрупчивания является повышенная концентрация примесей, особенно фосфора. Вредное влияние примесей было обнаружено при исследовании образцов-свидетелей, которые показали, что КР и особенно их сварные соединения в первые годы эксплуатации охрупчиваются значительно быстрее, чем это можно было ожидать только при действия нейтронного облучения.

Целью работы является оценка влияния радиационных дефектов, образующихся в металле стенки корпуса в процессе работы реактора, на характер диффузионного перераспределения фосфора.

Рабочая температура КР, а также дополнительная энергия в результате гамма-облучения

оказываются достаточными для появления диффузионной подвижности фосфора, который является элементом внедрения. Общая энергия системы Fe-P уменьшается, когда атомы фосфора находятся в дефектах кристаллической решетки и на границах зерен, которые являются ловушками для этих элементов. Границы зерен имеют более высокую свободную энергию, чем отдельные дефекты типа вакансий. Процесс обогащения границ фосфором в изотермических условиях продолжается до наступления динамического равновесия. При этом концентрация фосфора в очень тонкой зоне (5...10 атомных слоев) может в десятки раз превосходить среднюю величину. Охрупчивающий отпуск не вызывает никаких структурных изменений металла. Толщина адсорбционного слоя настолько мала, что изменение в нем сопротивления пластической деформации может не иметь существенного значения. Более важным, по-видимому, является снижение поверхностной энергии при образовании трещины по границам зерен. При этом разрушение обычно становится межзеренным, следуя главным образом границам исходных аустенитных зерен. В результате не только повышается критическая температура хрупкости, но снижается сопротивление усталостному разрушению, межкристаллитной коррозии и растрескиванию. Степень охрупчивания, характеризуемая величиной  $\Delta T_k$ , оказывается пропорциональной концентрации примеси на границах.

При повышении температуры металла уменьшается связь атомов фосфора с ловушками и равновесное состояние устанавливается при меньших уровнях его сегрегации на границах. Нагрев до температур высокого отпуска почти весь фосфор переводит в кристаллическую решетку. При быстром охлаждении это состояние фиксируется, и отпускная хрупкость исчезает, а при медленном - возникает вновь. В металловедении это явление называют обратимой отпускной хрупкостью [1]. Наибольшей склонностью к хрупкости этого вида обладают легированные стали обычной чистоты.

Температурная зависимость относительной величины равновесной концентрации фосфора на

границах зерен Рг приведена на рис. 1. Здесь Рд – концентрация диффузионно-подвижного фосфора в кристаллической решетке (часть фосфора может находиться, например, в неметаллических включениях, порах и других высокоэнергетических ловушках и не участвовать в процессе диффузии). Величина Рг/Рд увеличивается по мере снижения температуры. При более низких температурах падает подвижность фосфора, и процесс сегрегации прекращается.

Диффузионная подвижность атомов фосфора в кристаллической решетке при температуре ~ 300 °С невелика. По данным ННЦ ХФТИ и РНЦ “Курчатовский институт” процесс “теплового старения” корпусных сталей продолжается около 20000 ч [2]. Однако, учитывая, что длительность эксплуатации КР составляет сотни тысяч часов, процесс сегрегации фосфора на границах зерен может развиваться практически до равновесного состояния.

Никель вводился в шов корпусов ВВЭР-100 с целью снижения критической температуры хрупкости металла в исходном состоянии и повышения прокаливаемости. Однако легирование никелем повышает диффузионную подвижность фосфора в кристаллической решетке и в определенной мере величину Рд. Возможно, это явление связано с изменением плотности дефектов типа вакансий. В результате при заданной температуре ускоряется рост концентрации фосфора на границах зерен.

Существенно, что при низком содержании фосфора (до 0,003%) повышение содержания никеля с 1 до 3% практически не усиливает склонность стали к отпусковой хрупкости, тогда как при 0,01% Р такое же изменение содержания никеля обеспечивает достаточно интенсивную диффузию фосфора для протекания процесса сегрегации, и степень охрупчивания увеличивается [1]. Равновесная концентрация фосфора на границах зерен повышается с ростом содержания фосфора и никеля. Рабочая температура корпуса реактора  $T=300$  °С обуславливает значительную сегрегацию фосфора (см. рис. 1).

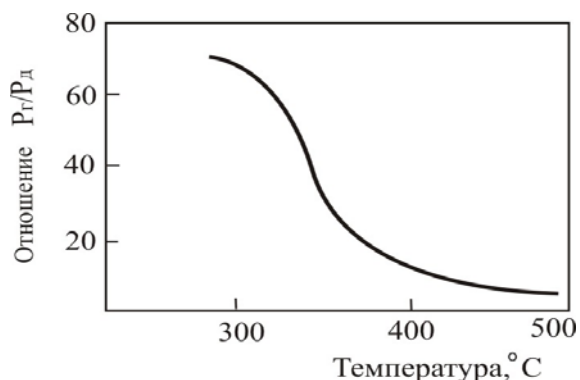


Рис. 1. Зависимость равновесной концентрации фосфора на границе от температуры

При изготовлении корпуса реактора используется сварка под флюсом. Процесс сегрегации

фосфора на границах зерен в шве развивается сильнее, чем в основном металле. Это связано с ростом аустенитных зерен в шве и использованием недостаточно чистых сварочных материалов. Можно отметить, что кроме фосфора вредными примесями являются сурьма, мышьяк, олово.

При работе активная зона корпуса реактора облучается мощным потоком нейтронов. Радиационные дефекты, возникающие в кристаллической решетке под действием быстрых нейтронов, могут существенно изменить кинетику сегрегации фосфора. Эти дефекты являются ловушками с достаточно высокой энергией (для крупных дефектов уровни энергии могут приближаться к величине энергии свободной поверхности). Захватывая отдельные атомы, ловушки снижают долю диффузионно-подвижного фосфора [3].

Размеры дефектов зависят от энергетического спектра нейтронного потока. Чем выше энергия нейтрона, тем больше величина дефекта, образующегося в кристаллической решетке. Исследования трепана (металл сварного шва), вырезанного из корпуса выведенного из эксплуатации реактора ВВЭР-440 блока №2 Нововоронежской АЭС, показали, что дефекты имеют вид дисков толщиной около 1 нм и диаметром около 10 нм (рис. 2) и их плотность  $\lambda$  составляет приблизительно  $\sim 7 \cdot 10^{16}$  см<sup>-3</sup> [4].

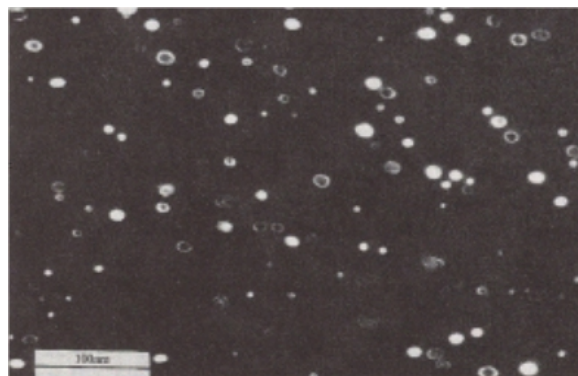


Рис. 2. Дискообразные включения в облученной корпусной стали (трепан ВВЭР-440) [4]

Основываясь на средних значениях размеров дискообразных включений, можно приблизительно оценить относительную величину объема дефектов ~0,0055, т.е. суммарный объем радиационных дефектов составляет порядка 0,5% объема кристалла. Исходя из тех же размеров можно условно оценить суммарную величину площади поверхностей включений на единицу объема кристалла  $S_v \sim 11 \cdot 10^4$  см<sup>2</sup>/см<sup>3</sup>.

В целом, кинетика диффузионного процесса перераспределения фосфора при облучении стали нейтронным потоком выглядит следующим образом. Доля диффузионно-подвижного фосфора и соответственно скорость охрупчивания стали за счет сегрегации фосфора на границах зерен максимальна на начальных этапах эксплуатации реактора и снижается по мере увеличения плотности

радиационных дефектов кристаллической решетки, являющихся ловушками для атомов фосфора. По мере увеличения флюенса нейтронного потока доля диффузионно-подвижного фосфора может снизиться настолько, что по условиям динамического равновесия может начаться обратный процесс - отток фосфора из границ зерен в кристаллическую решетку. Чувствительность металла к отпускной хрупкости при этом снижается.

Анализ образцов металла шва КР энергоблока № 1 Козлодуйской АЭС показал, что в активной зоне по толщине стенки КР фосфор распределен неравномерно [5]. Максимальная концентрация фосфора - у внутренней поверхности стенки, а минимальная - у наружной. Аналогичные явления были обнаружены у упомянутого выше трепана из КР Нововоронежской АЭС. Кроме того, коэффициент охрупчивания металла шва у внутренней стенки КР оказался ниже, чем у наружной. Это хорошо согласуется с описанными выше явлениями обратимой отпускной хрупкости. Металл около внутренней поверхности стенки подвержен максимальному действию нейтронного потока, в этой области максимальна доля фосфора, находящегося в радиационных дефектах кристаллической решетки, и минимальна доля диффузионно-подвижного фосфора. В связи с этим явления обратимой отпускной хрупкости у внутренней поверхности стенки КР проявились слабее.

Явления обратимой отпускной хрупкости не учитывались в должной мере при создании технологии сварки корпусов реакторов, особенно типа ВВЭР-440/230. В металле швов корпусов этих реакторов содержится 0,03...0,05% фосфора, что приводит к быстрому росту  $T_k$ . Для снижения критической температуры хрупкости и продления ресурса этих корпусов (без внутреннего аустенитного покрытия) была разработана технология восстановительной термообработки - "отжиг". Эта технология предусматривает разгрузку реактора, нагрев стенки активной зоны со скоростью не более 20 °С/ч до 475 °С, выдержку при этой температуре в течение 150 ч и охлаждение со скоростью не более 30 °С/ч.

Ряд специалистов по эксплуатации ядерных реакторов считает, что при этом "восстанавливается структура стали". Однако эти параметры термообработки соответствуют низкотемпературному отпуску, не приводящему к заметным изменениям структуры корпусной стали. Отжиг является сравнительно кратковременным возмущением, действующим на установившийся процесс перераспределения фосфора между кристаллической решеткой, границами зерен и радиационными дефектами. Во время отжига за счет повышения подвижности фосфора при нагреве ускоряется его переход в радиационные дефекты. После окончания отжига

процесс перераспределения фосфора постепенно возвращается к установившемуся режиму, и эффект отжига не является длительным. Характерно, что термообработка по указанному выше режиму отжига приводит к максимальному охрупчиванию необлученной стали, не имеющей достаточной плотности радиационных дефектов.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Обратимая отпускная хрупкость, особенно стадия быстрого роста критической температуры хрупкости, развивается на начальном этапе эксплуатации реактора, и в дальнейшем она уменьшается для металла активной зоны. Учет процессов обратимой отпускной хрупкости дает возможность более достоверно оценивать текущее состояние металла КР и динамику деградации его свойств в активной зоне. Склонность металла к развитию обратимой отпускной хрупкости можно оценить заранее или в процессе эксплуатации КР путем испытаний образцов вне реактора. Выгрузка и испытания образцов-свидетелей на начальном этапе эксплуатации КР (до 10–15 лет, когда накопленный флюенс быстрых нейтронов не достигает значительного уровня) и низком содержании фосфора (менее 0,01 %) не являются информативными.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Г.В. Курдюмов, Л.М. Утевский, Р.И. Энтин. Превращение аустенита при охлаждении и отпуск закаленной стали // *Металловедение и термическая обработка стали*. 1983, с. 111-177.
2. В.Ф. Зеленский, И.М. Неклюдов, Л.С. Ожигов, П.А. Платонов, А.М. Крюков, А.Д. Амаев. Проблема радиационного охрупчивания корпусов реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 и пути ее решения // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1997, в. 1(65), 2(66), с. 119-122.
3. О.Г. Касаткин. Механизмы охрупчивания сварных соединений корпусов реакторов типа ВВЭР под действием примесей // *Труды 5-й Международной конференции «Материаловедческие проблемы при проектировании, изготовлении и эксплуатации оборудования АЭС»*, С – Петербург. 1998, т. 2, с. 168 - 176.
4. В.А. Gurovich, Е.А. Kuleshova, Zu.А. Nikolaev, Za.I. Shtrombakh. Assessment of relative contributions from different mechanisms to radiation embrittlement of reactor pressure vessel steels // *Journal of Nuclear Mater.* 1997, v. 246, p. 91-120.
5. Т. Kamenova, S. Vodenicharov, Е. Momchilova, V. Gaidarova. Phosphorous content and distribution in the metal of RPV weld 4. Report of a workshop on kozloduy unit 1 reactor pressure vessel integrity // *International atomic energy agency. Sofia, Bulgaria, 21 – 23 may 1997.*

Статья поступила в редакцию 20.10.2008 г.



## **ТЕПЛОВЕ ОКРИХЧУВАННЯ ЗВАРНИХ З'ЄДНАНЬ КОРПУСІВ РЕАКТОРІВ ТИПУ ВВЕР**

*O.G. Kasatkin*

Основною причиною прискороного окрихчування зварних з'єднань корпусів реакторів у початкові періоди їхньої експлуатації є оборотна відпускна крихкість, викликувана підвищеною концентрацією дифузійно-рухливих домішок, особливо фосфору. Радіаційні дефекти кристалічних ґрат, створювані потоком нейтронів, є високоенергетичними пастками і знижують концентрацію дифузійно-рухливих домішок. При збільшенні флюенса швидких нейтронів росте щільність дефектів кристалічних ґрат, які сприяють зниженню концентрації домішок на границях зерен і відповідно зменшенню відпускнуої крихкості.

## **THERMAL EMBRITTLEMENT OF WELDED JOINTS OF BODIES OF WWER TYPE REACTORS**

*O.G. Kasatkin*

The main cause of a rapid embrittlement of welded joints of reactor bodies during the initial periods of their service is the reversible temper brittleness caused by the increased concentration of diffusely-movable impurities, in particular phosphorus. Radiation defects of crystalline lattice, initiated by a flux of neutrons, are the high-energy traps and they reduce the concentration of diffusely-movable impurities. With increase in fluence of fast neutrons the density of crystalline lattice defects is growing that contributes to the decrease in concentration of impurities on the grain boundaries and, consequently, to the decrease in temper brittleness.