

## ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ НАПРЯЖЕННОГО СОСТОЯНИЯ НА СТЕПЕНЬ РАДИАЦИОННОГО ОХРУПЧИВАНИЯ КОРПУСНЫХ СТАЛЕЙ

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

Изучена роль напряженного состояния на радиационное охрупчивание корпусных сталей 15X2МФА, 15X2МФА-А и 15X2НМФА-А. С этой целью образцы типа СТ облучались в ненапряженном состоянии и под действием механической нагрузки, которая имитировала давление теплоносителя на стенку корпуса реактора. Облучение проведено до флюенсов быстрых нейтронов, которые соответствуют 40 годам эксплуатации реактора. Обнаружено, что в присутствии напряжения скорость радиационного охрупчивания повышается, причем вклад напряженного состояния сравним с вкладом нейтронного облучения.

### ВСТУПЛЕНИЕ

При эксплуатации металл корпуса реактора (КР) находится под действием нейтронного облучения, которое приводит к возникновению так называемого радиационного охрупчивания. Это явление характеризуется повышением границы текучести, сдвигом температуры хрупковязкого перехода, снижением пластичности металла.

К сожалению, физические механизмы явления радиационного охрупчивания корпусных материалов до сих пор точно не установлены. Это обусловлено широким спектром причин, которые влияют на результат облучения нейтронами. В особенности это касается условий облучения – температуры облучения, плотности потока и спектра нейтронов, величины остаточного напряжения в структуре материала. Последнее почти совсем неизвестно, поскольку исследования радиационной стойкости механических свойств конструкционных материалов проводятся при отсутствии напряженного состояния в образцах, в то время как при эксплуатации корпус реактора находится под давлением.

В реакторах типа ВВЭР-1000 давление теплоносителя составляет ~ 16 МПа, что создает в металле КР значительные напряжения (~170 МПа), которые могут намного облегчить хрупкое разрушение. Вопрос насколько сильно существование напряжения влияет на скорость радиационного охрупчивания поднимался не раз разными исследователями, но провести такой эксперимент очень тяжело, поскольку требуется система адекватной нагрузки на образцы, которые будут облучаться в условиях реактора.

С целью определения изменений параметров трещиностойкости с учетом влияния напряжения в процессе облучения до флюенсов быстрых нейтронов ( $E > 0,5$  МэВ) порядка проектного в 5-м блоке Ново-Воронежской АЭС были облучены две контейнерные сборки, укомплектованные образцами на статическое растяжение, на ударную вязкость (образцы типа Шарпи) и трещиностойкость. Образцы на трещиностойкость типа 0,5Т СТ (их толщина составляет полдюйма) находились в двух состояни-

ях: ненапряженные и под действием механической нагрузки, которая имитировала давление теплоносителя (рис. 1).

Для имитации напряженного состояния, которое создает давление теплоносителя в металле стенки корпуса реактора, часть образцов типа СТ были собраны с помощью металлических сильфонов в две цепи и механически нагружены. Нагруженные образцы были размещены рядом с ненагруженными образцами, что дало возможность провести сравнение данных для двух групп образцов одного и того же металла, облученных одинаковым потоком нейтронов.

### ИССЛЕДОВАННЫЕ МАТЕРИАЛЫ

Образцы изготовлены из трех марок стали, которые использовались для изготовления корпусов реакторов типа ВВЭР в бывшем Советском Союзе: две стали корпусов реакторов типа ВВЭР-440 и одна сталь реактора ВВЭР-1000.

Химический состав исследованных сталей приведен в табл. 1. Стали ВВЭР-440 с буквами А и А-А отличаются тем, что сталь с буквами А-А выплавлена из более чистой шихты, но тем не менее она содержит большую концентрацию фосфора и меди.

### УСЛОВИЯ ОБЛУЧЕНИЯ СБОРОК

Сборки облучались в транспортном канале для рым-болтов выгородки шахты реактора на высоте, которая обеспечивает плотность потока быстрых ( $E > 0,5$  МэВ) нейтронов ~  $10^{16}$  нейтр-м<sup>-2</sup>·с<sup>-1</sup>. На этих высотных отметках реактора существует довольно большой градиент плотности потока нейтронов. Длина каждой сборки составляла ~ 40 см, поэтому образцы, размещенные на нижних этажах, набрали дозу большую, чем образцы на верхних этажах (табл. 2). Из-за отсутствия в сборке детекторов нейтронного потока флюенсы быстрых нейтронов, накопленные образцами каждого этажа в каждой сборке, были определены путем расчета специалистами РНЦ "Курчатовский институт" в рамках меж-

дународной программы ТАСИС. В расчете было предположено, что условия облучения данных сборок идентичны условиям других экспериментальных сборок, оснащенных детекторами нейтронного потока и облученных в симметричных каналах реактора [1].

В отличие от стандартных контейнерных сборок с образцами-свидетелями данные экспериментальные сборки были открытыми, и образцы находились в контакте с теплоносителем. Поэтому температура облучения равнялась температуре воды первого контура, которая в местоположении образцов составляла ~ 290 °С.

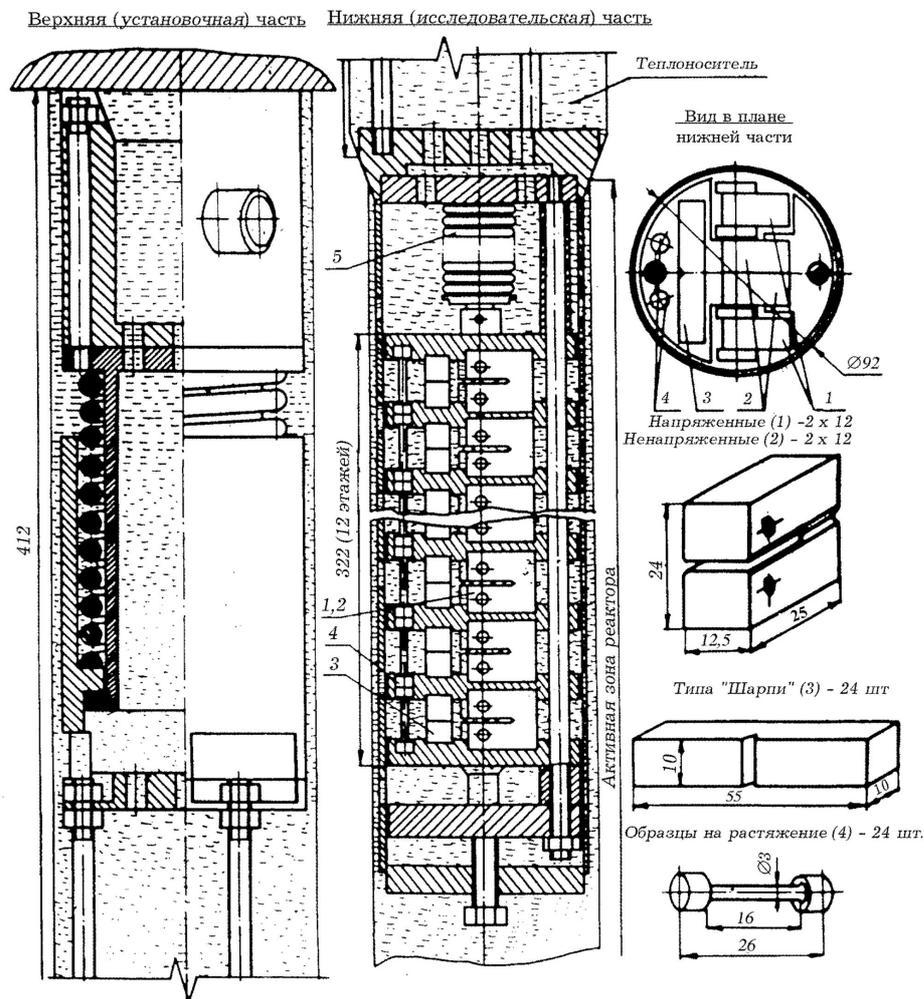


Рис. 1. Схема экспериментальной сборки

Химический состав исследованных сталей

Элемент	15X2МФА	15X2МФА-А	15X2НМФА-А
С	0,14	0,15	0,16
Si	0,2	0,23	0,25
Mn	0,36	0,40	0,35
Ni	0,11	0,10	1,12
Cr	2,0	2,68	1,86
S	0,012	0,012	0,012
P	0,007	0,01	0,008
Cu	0,09	0,10	0,05
V	0,2	0,25	0,11
Mo	0,6	0,65	0,56

Таблица 1

Значения флюенсов для середин каждого этажа

Марка стали	Флюенс нейтронов (E>0.5 МэВ), нейтр./м <sup>2</sup>	
	Сборка №1	Сборка №2
15X2МФА-А основной металл	1.93 · 10 <sup>23</sup>	1.95 · 10 <sup>23</sup>
	3.53 · 10 <sup>23</sup>	3.56 · 10 <sup>23</sup>
	4.57 · 10 <sup>23</sup>	4.6 · 10 <sup>23</sup>
15X2МФА основной металл	9.15 · 10 <sup>23</sup>	9.24 · 10 <sup>23</sup>
	1.04 · 10 <sup>24</sup>	1.05 · 10 <sup>24</sup>
	1.16 · 10 <sup>24</sup>	1.17 · 10 <sup>24</sup>
15X2НМФА-А основной металл	1.27 · 10 <sup>24</sup>	1.29 · 10 <sup>24</sup>
	1.38 · 10 <sup>24</sup>	1.39 · 10 <sup>24</sup>
	1.45 · 10 <sup>24</sup>	1.47 · 10 <sup>24</sup>

Таблица 2

## МЕТОДИКА ИСПЫТАНИЙ

Испытания на вязкость разрушения образцов СТ были проведены на универсальной разрывной машине Instron-8500 в соответствии с требованиями стандарта ASTM E 1921 [2]. Машина с электромеханическим приводом и предельной нагрузкой 100 кН оборудована дистанционным управлением и установлена в горячей камере ИЯИ.

Температура образцов при испытаниях поддерживалась с точностью  $\pm 0,2$  °С. Для измерения температуры использовались хромель-копелевые термопары, которые прошли метрологические испытания. Для измерения нагрузки и раскрытия трещины использовались системы измерения, относительная погрешность которых составляла по нагрузке  $\pm 0,5\%$ , а по смещению берегов надреза –  $\pm 0,1\%$ , что позволило определять нагрузку и смещения с высокой точностью и получать надежные диаграммы P-V. Так как смещение измерялось на передней поверхности образца, то вводилась поправка на смещение вдоль линии нагружения путем умножения измеренных значений на коэффициент 0,73.

Для определения температуры испытаний для каждого состояния каждого металла вычислялась температура  $T_{исп} = T_{28J} + C$ , где  $C = -28$  °С для 1/2Т образцов. Значение  $T_{28J}$  определялось по результатам ударных испытаний образцов Шарпи (10x10x55), полученным с использованием двухпорной испытательной машины КМД-30Д (маятниковый копер с запасенной ударной энергией 300 Дж в интервале температур  $-80...+100$  °С) согласно требованиям [3] на уровне запасенной энергии 28 Дж (рис. 2, 3).

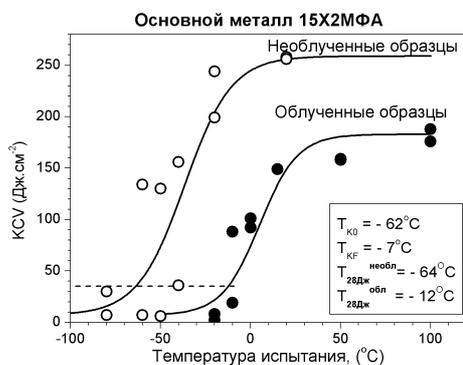


Рис. 2. Результаты ударных испытаний металла 15X2МФА

Испытания на внецентренное растяжение образцов 0,5Т СТ стали 15X2МФА проводили при одной температуре  $T_{исп}$  [4]. Полученные результаты привели к выводу, что при испытании ограниченного количества образцов предпочтительней испытывать их при разных температурах, поскольку выбор  $T_{исп} = T_{28J} + C$  по критерию 28 Дж дает иногда завышенную температуру. Учитывая этот опыт, испытания образцов сталей 15X2МФА-А и 15X2НМФА-А проведены при разных температурах в интервале

$\pm 50$  °С вокруг температуры, определенной по критерию в 28 Дж.

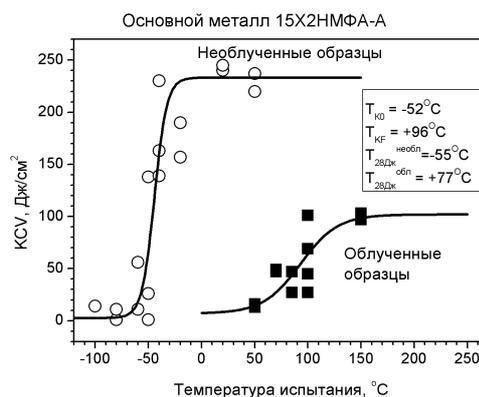
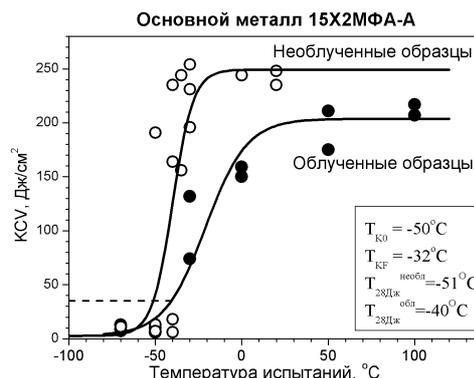


Рис. 3. Результаты ударных испытаний металла 15X2МФА-А и 15X2НМФА-А

Испытания были проведены согласно требованиям методики  $J$ -интеграла. Величину  $J_C$  определяли в момент начала хрупкого разрушения как сумму упругой и пластической компонент:  $J_C = J_e + J_p$  (рис. 4).

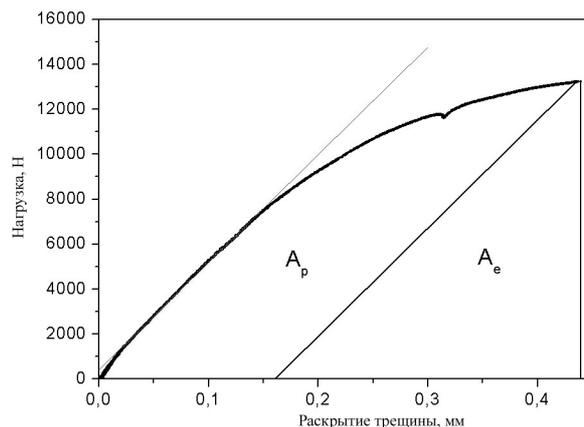


Рис. 4. Схема определения работы хрупкого разрушения

Используя значение  $J_C$ , вычисляли упруго-пластический эквивалент коэффициента интенсивности напряжений  $K_{Jc}$ . Референсная температура  $T_0$  определялась с помощью методики Мастер кривой, основанной на статистической модели хрупкого разрушения.

В соответствии с методикой [2] форма Мастер кривой одинакова для всех сталей ферритного класса (т.е. сталей с объемно-центрированной кристаллической решеткой) независимо от химического состава, термообработки и структурного состояния и имеет такой вид:

$$K_{JcMed} = 30 + 70 \exp[0.019(T_i - T_0)], \quad (1)$$

где  $T_0$  – референсная температура, при которой медиана температурной зависимости  $K_{JcMed}$  для образцов толщиной 25 мм равняется 100 МПа $\cdot\sqrt{м}$ ;  $T_i$  – температура испытаний для  $i$ -го образца, °С.

На основе полученных данных были построены Мастер кривые и определенные референсные температуры  $T_0$  для образцов размером 1Т.

С этой целью все значения  $K_{Jc}$  были приведены по формуле (2) в эквивалентные данные для образцов с толщиной 1Т (1 дюйм).

$$K_{Jc(1T)} = 20 + (K_{Jc(x)} - 20) \cdot \left( \frac{B_x}{B_{1T}} \right)^{1/4}. \quad (2)$$

$$\sum_{i=1}^n \frac{\delta_i \cdot \exp(0.019 \cdot (T_i - T_0))}{11 + 77 \cdot \exp(0.019 \cdot (T_i - T_0))} - \sum_{i=1}^n \frac{(K_{Jc}^i - 20)^4 \cdot \exp(0.019 \cdot (T_i - T_0))}{(11 + 77 \cdot \exp(0.019 \cdot (T_i - T_0)))^5} = 0. \quad (5)$$

Максимальное значение коэффициента интенсивности напряжений, которое может быть достоверно получено на образцах данной толщины и геометрии определяется согласно [2]:

$$K_{Jc(limit)} = \left( \frac{Eb_0\sigma_{ys}}{30} \right)^{1/2}, \quad (6)$$

где  $\sigma_{ys}$  и  $E$  – предел текучести и модуль Юнга при температуре испытания соответственно;  $b_0$  – лигамент образца (т.е. ширина образца, не ослабленная усталостной трещиной), который должен иметь достаточный размер, чтобы у кончика трещины сохранялась высокая степень стеснения деформации при разрушении.

Выражение (5) относится к общему случаю и упрощается к уравнению (1), когда значения  $K_{Jc(i)}$  получены при одной температуре испытаний.

Величина  $T_0$  фактически определяет положение Мастер кривой на температурной оси. Кроме расчетов  $T_0$  по стандарту E-1921 был использован второй способ для определения референсной температуры  $T_0$ , предложенный J.G.Merkle [6] и основанный на методе наименьших квадратов:

$$T_0 = \frac{\sum_{i=1}^n T_i - 52,63 \sum_{i=1}^n \ln \left[ \frac{K_{Jc(i)} - 30}{70} \right]}{n}. \quad (7)$$

Этот метод применяется для оценки температуры  $T_0$  высокоохлажденных корпусных материалов, для которых статистический закон распределения величины  $K_{Jc}$  существенно отличается от трехпараметрического распределения Вейбулла. В этом слу-

Доверительные границы Мастер кривой определяются согласно уравнениям (3) и (4):

$$K_{Jc(0,5)} = 25,4 + 37,8 \cdot \exp[0,019(T - T_0)]; \quad (3)$$

$$K_{Jc(0,95)} = 34,6 + 102,2 \cdot \exp[0,019(T - T_0)], \quad (4)$$

где  $T$  – значения температуры на оси абсцисс °С,  $T_0$  – температура, рекомендованная Мастер кривой, °С. Кривые доверительных границ наносятся на соответствующие графики Мастер кривых.

Как оказалось, все полученные экспериментальные результаты размещены внутри 5 и 95% доверительных границ.

Для оценки величины  $T_0$  для материалов в исходном состоянии и после облучения был использован мультитемпературный подход. Значения  $T_0$  были определены с помощью метода максимального правдоподобия и численного решения уравнения (5) [5]. В этом уравнении символ Кронекера  $\delta_i$  равен единице, когда экспериментальные значения  $K_{Jc}$  не превышают максимальное значение коэффициента интенсивности напряжений  $K_{Jc(limit)}$  и  $\delta_i = 0$ , если  $K_{Jc} > K_{Jc(limit)}$ .

чае оценка величины  $T_0$ , основанная на методе наименьших квадратов, дает лучший результат по сравнению с формулой (1), в которой используется фиксированный наклон прямой Вейбулла, равный 4.

## РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

На рис. 5 и 6 приведены результаты для сталей 15X2МФА и 15X2МФА-А, облученных до флюенсов быстрых нейтронов  $\sim 1,04 \cdot 10^{24}$  и  $\sim 3,36 \cdot 10^{23}$  нейтр./см<sup>2</sup> соответственно.

Образцы стали 15X2МФА-А получили самый большой флюенс быстрых ( $E > 0,5$  МэВ) нейтронов  $\sim 1,4 \cdot 10^{24}$  нейтр.м<sup>-2</sup> и степень их охрупчивания очень высока: сдвиги  $\Delta T_0$  существенно превышают 130 °С (табл.3). О высокой степени охрупчивания говорит также и большой разброс значений  $K_{Jc}$ .

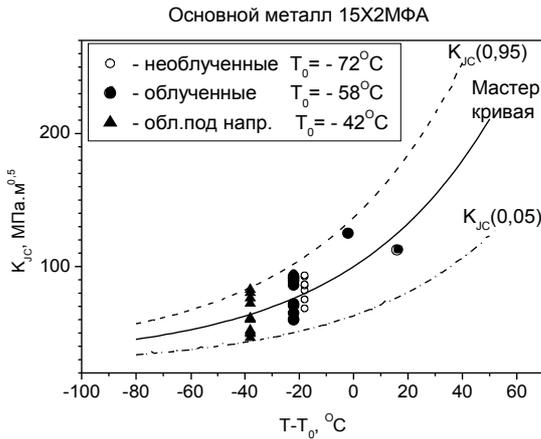


Рис. 5. Мастер кривые с доверительными границами 95 и 5% для трех состояний металла 15X2MФА

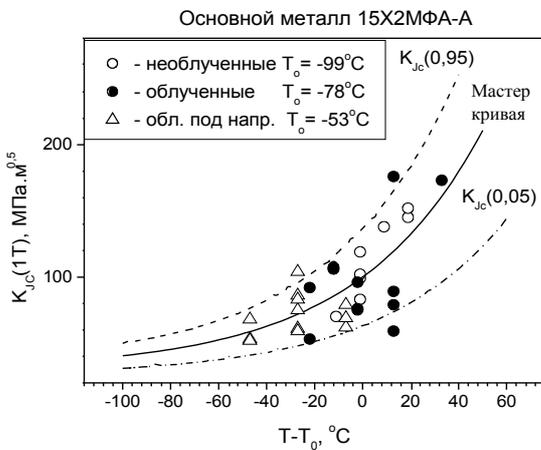
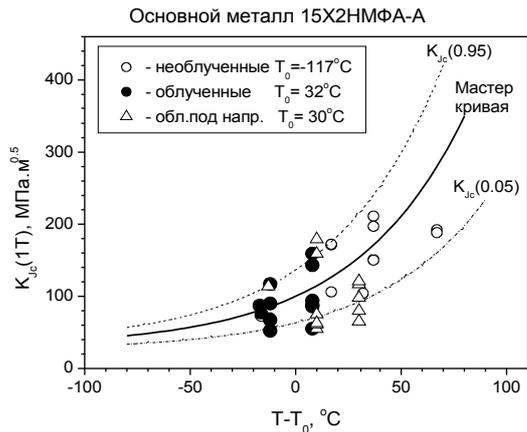
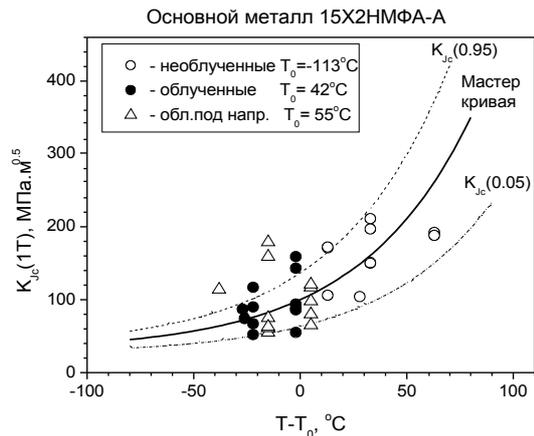


Рис. 6. Мастер кривые с доверительными границами 95 и 5% для трех состояний металла 15X2MФА-А



а



б

Рис. 7. Мастер кривые с доверительными границами 95 и 5% для трех состояний металла 15X2НМФА-А, рассчитанные по стандарту E 1921 (а) и по методике Merkle (б)

Из рис.7,а видно, что несколько значений  $K_{Jc}$  для образцов, облученных под напряжением и без нагрузки, лежат ниже 5% доверительной границы Мастер кривой со значением  $T_0$ , рассчитанной по [2]. Предполагая, что в данной ситуации статистический закон распределения  $K_{Jc}$  меняется, значения  $T_0$  для этих образцов рассчитаны по методу Merkle [6]. Для сравнения были пересчитаны таким же образом и остальные образцы этой стали. Полученные после обработки по [6] результаты представлены на рис. 7,б. Видно, что доверительная 5% граница теперь огибает снизу все значения  $K_{Jc}$ .

В результате исследований выявлено влияние напряженного состояния на степень охрупчивания сталей (см. табл. 3). Для большей наглядности на рис. 8 и 9 приведены зависимости  $K_{Jc}$  от температуры испытания для трех состояний металла: необлученного, облученного и облученного под нагрузкой.

Значения референсной температуры  $T_0$  для исследованных материалов

Материал	Флюенс, $10^{22}$ нейтр.м <sup>-2</sup>	Условия	$T_0$ , °C	$\Delta T_0$ , °C
15X2МФА	~ 33,6	Необлученные	-72	
		Облученные	-58	14
		Облученные под нагрузкой	-42	30
15X2МФА-А	~ 104	Необлученные	-99	-
		Облученные	-78	21
		Облученные под нагрузкой	-53	45
15X2НМФА-А	~ 138	Необлученные	-117	-
		Облученные	32 (42*)	149 (159*)
		Облученные под нагрузкой	30 (55*)	147 (172*)

\* Данные, полученные по методу Merkle [5]

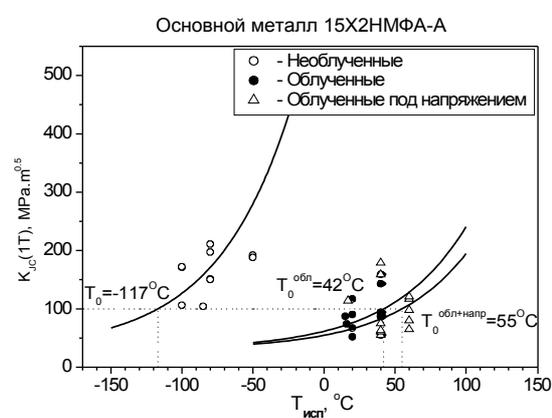
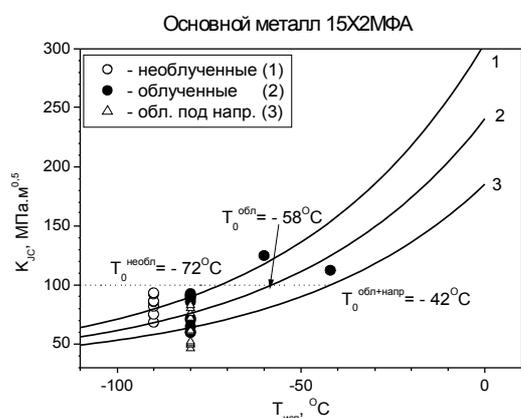


Рис. 9. Радиационное охрупчивание никельсодержащей корпусной стали

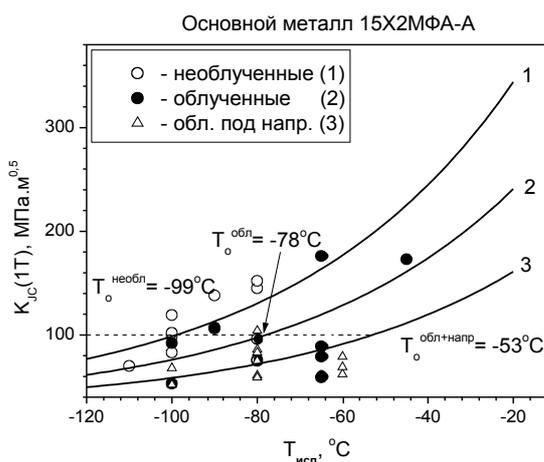


Рис. 8. Эффект напряженного состояния в процессе облучения для безникелевых сталей

Для сталей ВВЭР-440 влияние напряжения близко к влиянию облучения – из рис. 8 и табл. 3 следует, что сдвиг Мастер кривой для облученного состояния относительно необлученного близок к сдвигу кривой облученного под нагрузкой состояния относительно облученного состояния.

Как видно, для значения  $K_{Ic} = 100$  МПа $\sqrt{м}$  референсная температура  $T_0$  для облученных ненапряженных образцов металла 15X2МФА превышает на 14 °C ее значения для необлученных образцов. Общее влияние нейтронного облучения и напряжения приводит к повышению референсной температуры уже на 30 °C (см. из рис. 8, табл. 3).

Для металла 15X2МФА-А влияние облучения приводит к повышению  $T_0$  на 21 °C, а общее влияние облучения и механической нагрузки – на 45°C.

Образцы металла ВВЭР-1000 (сталь 15X2НМФА-А) получили самый высокий флюенс быстрых нейтронов –  $\sim 1,38 \cdot 10^{24}$  нейтр.см<sup>-2</sup> и степень их охрупчивания очень высокая (см. рис. 9). Значения сдвигов  $\Delta T_0$  для металла 15X2НМФА-А достигло са-

мых высоких значений по сравнению со всеми другими исследованными сталями:  $\Delta T_0$  существенно превышают 130 °С. При такой степени охрупчивания эффект нагружения на образцы никельсодержащей стали весьма мал: для облученных образцов  $\Delta T_0 = 159$  °С, а для облученных в условиях механической нагрузки  $\Delta T_0 = 172$  °С.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в результате исследований найдено, что механическая нагрузка, имитирующая давление теплоносителя, ускоряет радиационное охрупчивание, вклад напряженного состояния сравним с влиянием нейтронного облучения. С физической точки зрения это явление обусловлено тем, что скорость создания радиационных дефектов в условиях напряжения выше, чем в отсутствие напряжений.

Большой эффект радиационного охрупчивания при меньшем флюенсе быстрых нейтронов стали 15X2МФА-А, чем стали 15X2МФА связан, очевидно, с большим содержанием фосфора и меди в стали 15X2МФА-А.

Образцы стали 15X2НМФА-А (основной металл обечайки корпуса реактора ВВЭР-1000) набрали наибольший флюенс нейтронов ( $\sim 1,38 \cdot 10^{24}$  нейтр./м<sup>2</sup>), соответственно степень их охрупчивания также наибольшая. Сдвиг референсной температуры превышает 150 °С. Наблюдается более пологий наклон температурной зависимости  $K_{Jc}(T)$  за счет расширения области кривой  $K_{Jc}(T)$  между верхним и нижним шельфами. Таким образом, при высокой степени охрупчивания стандартная форма Мастер кривой не удовлетворяет экспериментальным данным. Более приемлемой в этом случае является модель Меркле. Полученные результаты свидетельствуют, что величина эффекта

напряженного состояния составляет менее 10% от влияния облучения.

Таким образом, можно сделать вывод, что малый эффект нагружения в никельсодержащей корпусной стали обусловлен очень высокой степенью ее радиационного охрупчивания. При этом большое радиационное охрупчивание в этой стали обусловлено именно содержанием никеля при облучении большим потоком быстрых нейтронов, при котором не успевают пройти процессы взаимной рекомбинации вакансий, и, как следствие, не успевают релаксировать появляющиеся напряжения.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Report on the irradiation conditions in the Unit 5 of Novovoronezh NPP / PCP-4-IRLA(99)-D1, p. 9.
2. E 1921 Standard Test Method for Determination of Reference Temperature,  $T_0$ , for Ferritic Steels in the Transition Range. Annual Book of ASTM Standards, Volume 03.01, 1997.
3. ГОСТ 9454-78. *Металлы. Метод испытания на ударный изгиб при пониженной, комнатной и повышенной температурах*. М.: Изд-во стандартов, 1982, 12 с.
4. E. Grynuk, L.I. Chyrko Y. Gulchuk et al. Radiation-induced embrittlement of WWER-440 reactor pressure vessel steel under loading // *Проблемы прочности (Strength of materials)*. 2003, №1, с. 39–47.
5. K. Wallin. Validity of Small Specimen Fracture Toughness Estimates Neglecting Corrections of Constraint // *Constraint Effects in Fracture Theory and Applications*. Second Volume, ASTM STP 1244, Mark Kirk and Ad Bakker, Eds., American Society for Testing And Materials, Philadelphia, 1995.
6. *A Linearized Least Squares Equation for Calculation  $T_0$* . HSST Program; Letter Report /US NRC. ORNL/NRC/LTR – 99/17. Oak Ridge, TN, 2000.

### ДОСЛІДЖЕННЯ ВПЛИВУ НАПРУЖЕНОГО СТАНУ НА СТУПІНЬ РАДІАЦІЙНОГО ОКРИХЧУВАННЯ КОРПУСНИХ СТАЛЕЙ

*Е.У. Гринік, Л.І. Чирко, В.М. Ревка, Ю.В. Чайковський, Ю.С. Гульчук*

Вивчена роль напруженого стану на радіаційне окрихчування корпусних сталей 15X2МФА, 15X2МФА-А та 15X2НМФА-А. З цією метою зразки типу СТ опромінювались у ненапруженому стані та під дією механічного навантаження, яке імітувало тиск теплоносія на стінку корпусу реактора. Опромінення проведено до флюенсів швидких нейтронів, які відповідають 40 рокам експлуатації. Знайдено, що у присутності напруження швидкість радіаційного окрихчування підвищується, причому внесок напруженого стану близький до внеску нейтронного опромінення.

### STUDY OF STRESSED STATE EFFECT ON RPV STEEL IRRADIATION EMBRITTLEMENT RATE

*E.U. Grynuk, L.I. Chyrko, V.N. Revka, Yu.V. Chaikovsky, Yu.S. Gulchuk*

The paper presents the study of the role of the stressed state effect on the irradiation embrittlement of the RPV steels 15Cr2MoV, 15Cr2MoV-A and 15Cr2NiMoV-A. With this purpose CT-type specimens were irradiated in the unstressed state and under the mechanical load imitating the pressure of the coolant on the wall of the reactor vessel. The irradiation was performed up to the fluences of the fast neutrons corresponding to 40 years of the reactor operation. The rate of the irradiation embrittlement is found to increase at the presence of the stress, the contribution of the stressed state being comparable with the contribution of the neutron irradiation.