

УДК 621.039.536.2:539.4

ГРНТИ 44.33.31

ЮРЧЕНКО Елена Владимировна

**ИССЛЕДОВАНИЕ И ПРОГНОЗИРОВАНИЕ РАДИАЦИОННОГО И ТЕПЛООВОГО
ОХРУПЧИВАНИЯ МАТЕРИАЛОВ ЭКСПЛУАТИРУЕМЫХ И ПЕРСПЕКТИВНЫХ
КОРПУСОВ РЕАКТОРОВ ВВЭР**

Специальность 05.16.09 – материаловедение (машиностроение)

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени

кандидата технических наук

Санкт-Петербург

2015г.

Работа выполнена в **Федеральном государственном унитарном предприятии**
«Центральный научно-исследовательский институт конструкционных материалов
«Прометей»

Научный руководитель:

Марголин Борис Захарович

доктор технических наук, профессор

Официальные оппоненты:

Неустроев Виктор Степанович

доктор технических наук,
старший научный сотрудник;
Открытое акционерное общество
«Государственный научный центр научно-
исследовательский институт атомных
реакторов»; начальник лаборатории

Печенкин Валерий Александрович

кандидат физ.-мат. наук,
старший научный сотрудник;
Федеральное государственное унитарное
предприятие «Государственный научный
центр РФ - физико-энергетический институт
им. А.И. Лейпунского»;
начальник лаборатории

Ведущая организация:

Акционерное общество «Опытное
конструкторское бюро «Гидропресс»

Защита диссертации состоится «13» мая 2015 г. в 11 ч. 00 мин. на заседании диссертационного совета Д411.006.01 при Федеральном государственном унитарном предприятии «Центральный научно-исследовательский институт конструкционных материалов «Прометей» по адресу: 191015, г. Санкт-Петербург, Шпалерная ул., д.49.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФГУП «ЦНИИ КМ «Прометей» и на сайте: dissovet.crim-prometey.ru/Theses.aspx?type=1

Автореферат разослан «__» _____ 2015 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета Д411.006.01

Заслуженный деятель науки РФ

д.т.н., профессор

В.А. Малышевский

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность:

Корпус реактора (КР) является основным незаменимым элементом, определяющим ресурс ядерной энергетической установки (ЯЭУ) типа ВВЭР. Ресурс КР в основном определяется его сопротивлением хрупкому разрушению (СХР). Ресурс КР считается исчерпанным, когда отсутствие хрупкого разрушения не может быть гарантировано при любых штатных и аварийных нагрузках. Для адекватной оценки СХР и, следовательно, ресурса КР необходимо знание о кинетике охрупчивания материалов под воздействием нейтронного облучения и рабочей температуры.

В настоящее время проводится комплекс работ по продлению срока эксплуатации реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000. Наряду с продлением срока эксплуатации ведутся интенсивные работы по проектированию реакторов ВВЭР нового поколения (поколение 3+). Ясно, что обеспечить обоснованное продление срока эксплуатации реакторов ВВЭР и выполнить оптимальное проектирование новых реакторов возможно только при наличии полной информации о деградации свойств материалов в процессе эксплуатации и, в частности, о кинетике их охрупчивания, обусловленной нейтронным облучением и тепловым старением.

К сожалению, нормативная база экспериментальных данных и нормативные (ПНАЭ Г-7-002-86) зависимости, прогнозирующие охрупчивание материалов КР, достаточно устарели, так как не пересматривались с 1986 года. Выполненный с этого времени комплекс исследований показал, что эти зависимости в ряде случаев дают неадекватный и неконсервативный прогноз.

При проектировании реакторов нового поколения из новых и модифицированных сталей необходимо получать оперативную информацию об их сопротивлении хрупкому разрушению под воздействием нейтронного облучения и теплового старения. Поэтому актуальными являются вопросы, касающиеся методологии использования результатов испытаний ускоренно облученных (за малое время) образцов для прогноза охрупчивания материала при менее интенсивном облучении типичном для облучения стенки КР (за длительное время).

При разработке технологий изготовления новых или модифицированных сталей для новых реакторов возникает важный технический и финансовый вопрос: до какой степени

новые материалы должны быть чистыми по содержанию примесей. Ясно, что если дальнейшее снижение концентрации примесей не приводит к увеличению сопротивления хрупкому разрушению материала, то такое снижение технически нецелесообразно, а финансово затратно. Поэтому для обеспечения оптимальной технологии изготовления новых и модифицированных сталей необходимо знание пороговых значений концентрации примесных элементов, ниже которых сопротивление хрупкому разрушению материалов не растет.

Другой, противоположный вопрос возникает при продлении срока эксплуатации КР ВВЭР первых поколений. Некоторые КР более раннего поколения изготовлены из материалов с высоким содержанием примесей. Для адекватной оценки охрупчивания таких материалов необходимо знать предельные концентрации примесей, выше которых сопротивление хрупкому разрушению не уменьшается.

Кроме того, актуально развитие методов, позволяющих давать оперативные прогнозы по тепловому охрупчиванию материалов, протекающему в условиях длительного (60 лет и более) воздействия эксплуатационных температур ≈ 300 °С.

В связи с изложенным были поставлены следующие цели диссертационной работы:

Цели работы

- Разработка дозо-временных зависимостей, описывающих кинетику охрупчивания материалов корпусов эксплуатирующихся и проектируемых реакторов типа ВВЭР в процессе эксплуатации под действием нейтронного облучения и теплового старения.
- Определение закономерностей влияния интенсивности нейтронного облучения (флакса нейтронов) на охрупчивание корпусных материалов в зависимости от доминирующих механизмов радиационного повреждения. Оценка возможности использования данных ускоренного облучения для прогнозирования охрупчивания материалов КР ВВЭР при эксплуатации.
- Разработка экспериментально-расчетного метода для ускоренного прогнозирования теплового старения корпусных материалов. Оценка теплового старения материалов КР ВВЭР-1000.
- Установление пороговых значений концентраций примесных элементов в материалах КР ВВЭР, ниже которых сопротивление охрупчиванию не увеличивается (сдвиг критической температуры хрупкости не уменьшается). Установление предельных значений концентраций примесных элементов в материалах ВВЭР, выше которых сопротивление

охрупчиванию не уменьшается (сдвиг критической температуры хрупкости не увеличивается).

- Прогнозирование трансформации температурной зависимости вязкости разрушения по данным испытаний образцов на ударный изгиб.

Научная новизна работы

1. Разработана методология прогнозирования радиационного охрупчивания корпусных реакторных материалов и получены новые дозо-временные зависимости для материалов КР ВВЭР, учитывающие влияние примесных и легирующих элементов, а также температуры облучения.
2. Выявлены закономерности и определено влияние интенсивности нейтронного облучения (эффект флакса нейтронов) на радиационное охрупчивание корпусных материалов ВВЭР (сдвиг критической температуры хрупкости) в зависимости от доминирующих механизмов радиационного повреждения.
3. Предложен подход к определению пороговых и предельных значений концентрации примесных элементов и установлены конкретные пороговые и предельные значения содержания фосфора и меди для материалов КР ВВЭР.
4. Разработан новый экспериментально-расчетный метод для прогнозирования теплового старения материалов КР ВВЭР. Получен патент на изобретение №2431342 «Способ оценки степени охрупчивания материалов корпусов реакторов ВВЭР-1000 в результате теплового старения».

Практическая значимость работы

1. Полученные в рамках диссертации дозовые зависимости, описывающие охрупчивание в процессе эксплуатации материалов КР ВВЭР-440, включены в Руководящий документ ОАО «Концерн Росэнергоатом»: МТ 1.2.1.15.0232-2014 «Расчет на сопротивление хрупкому разрушению корпусов реакторов АЭС с ВВЭР-440 (В-213) при продлении срока эксплуатации до 65 лет. Методика».
2. Полученные в рамках диссертации дозо-временные зависимости, описывающие охрупчивание металла в процессе эксплуатации материалов КР ВВЭР-1000, включены в Руководящие документы ОАО «Концерн Росэнергоатом»: РД ЭО 1.1.2.09.0789-2012 «Методика определения вязкости разрушения по результатам испытаний образцов-свидетелей для расчета прочности и ресурса корпусов реакторов ВВЭР-1000», РД ЭО

- 1.1.2.99.0920-2014 «Расчет на сопротивление хрупкому разрушению корпусов водородных энергетических реакторов на стадии проектирования. Методика», РД ЭО 1.1.3.99.0871-2012 «Методика расчета на сопротивление хрупкому разрушению корпусов реакторов АЭС с ВВЭР-1000 при продлении срока эксплуатации до 60 лет».
- 3 Выполненные оценки теплового охрупчивания на основании нового экспериментально-расчетного метода послужили обоснованием раздела по тепловому старению материалов КР ВВЭР-1000, включенного в РД ЭО 1.1.3.99.0871-2012 «Методика расчета на сопротивление хрупкому разрушению корпусов реакторов АЭС с ВВЭР-1000 при продлении срока эксплуатации до 60 лет».
 - 4 Полученные закономерности по влиянию интенсивности потока нейтронов (флукса нейтронов) на сдвиг критической температуры хрупкости послужили обоснованием корректности получения дозовых зависимостей для стали 15Х2МФА-А мод. А и мод. Б КР ВВЭР-1200 (поколение 3+) на базе результатов испытаний ускоренно облученных образцов.
 - 5 Полученные дозовые и дозо-временные зависимости для материалов ВВЭР включены в международный код МАГАТЭ “Unified procedure for lifetime assessment of components and piping in WWER NPPs “Verlife”, 2003-2012”.
 - 6 Упомянутые в данном разделе Руководящие документы одобрены Федеральной службой по экологическому, технологическому и атомному надзору (РОСТЕХНАДЗОР).
 - 7 На базе разработанных Руководящих документов ведется обоснование продления срока эксплуатации реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000.
 - 8 На базе РД ЭО 1.1.2.99.0920-2014 «Расчет на сопротивление хрупкому разрушению корпусов водородных энергетических реакторов на стадии проектирования. Методика» дано обоснование срока эксплуатации 60 лет для новых проектов ВВЭР – ВВЭР-ТОИ (поколение 3+).
 - 9 Зависимости, прогнозирующие радиационное охрупчивание от температуры облучения, были использованы в проекте новой редакции методики «Определение параметров гидравлических испытаний корабельных ППУ при эксплуатации с учетом проведения «мокрого» отжига».

Основные положения, выносимые на защиту

- Результаты исследования влияния флюенса нейтронов, температуры облучения, легирующих и примесных элементов на охрупчивание материалов КР ВВЭР;

- Результаты исследования совместного влияния теплового старения и нейтронного облучения на охрупчивание материалов КР ВВЭР-1000;
- Дозовые и дозо-временные зависимости охрупчивания материалов КР ВВЭР при нейтронном облучении и тепловом старении;
- Процедура и определение пороговых и предельных значений содержания примесных элементов (фосфора и меди) для материалов КР ВВЭР;
- Закономерности влияния интенсивности нейтронного облучения (флакса нейтронов) на охрупчивание КР ВВЭР в зависимости от доминирования механизмов радиационного охрупчивания;
- Новый экспериментально-расчетный метод прогнозирования теплового охрупчивания материалов КР;
- Результаты оценки теплового охрупчивания для материалов КР ВВЭР-1000 за срок службы 60 лет;
- Обобщение корреляционных связей между сдвигами критической температуры хрупкости, определенными по двум типам испытаний: на ударный изгиб и на вязкость разрушения.

Апробация работы

Материалы, представленные в диссертации, были доложены на конференциях:

- Шестая Международная конференция: «Проблемы материаловедения при проектировании, изготовлении и эксплуатации оборудования АЭС». Россия, Санкт-Петербург, 2000.
- Седьмая Международная конференция: «Проблемы материаловедения при проектировании, изготовлении и эксплуатации оборудования АЭС». Россия, Санкт-Петербург, 2002.
- Ежегодная научно-техническая конференция «Молодые специалисты об актуальных вопросах атомной энергетики». Атомэнергопроект СПб, 30 мая- 2 июня, 2001.
- The IAEA Technical Meeting on Radiation embrittlement and Life Management of Reactor Pressure Vessels, Znojmo, Czech Republic, 18-22 October, 2010.
- FINAL DISSEMINATION MEETING OF TAREG PROJECTS 2.00/01 AND 2.03/01, 30 November - 1 December, 2010, Kiev, Ukraine.
- Межотраслевой семинар «Физика радиационных повреждений материалов атомной техники», 24-26 апреля, 2012, г. Обнинск.

- 12 Международная конференция "Проблемы материаловедения при проектировании, изготовлении и эксплуатации оборудования АЭС", 5-8 июня, 2012, г.Пушкин.
- 19th European Conference on Fracture "Fracture Mechanics for Durability, Reliability and Safety", Kazan, Russia, 26-31 August, 2012.
- Международная научно-техническая конференция «Конструкционная прочность материалов и ресурс оборудования АЭС «РЕСУРС – 2012» Киев, Украина, 2 – 5 октября, 2012.
- LONGLIFE Co-operative meeting, September 18, 2012, Seville, Spain.
- Межотраслевой семинар «Физика радиационных повреждений материалов атомной техники», 24-26 апреля, 2013, г.Обнинск.
- X Российская конференция по реакторному материаловедению, 27-31 Мая, 2013, Димитровград, ОАО «ГНЦ НИИАР».
- Научная конференция, посвященная 50-летию ОРМ «Новые материалы для инновационного развития атомной энергетики», Димитровград, 24-27 марта, 2014, ОАО «ГНЦ НИИАР».
- 13 Международная конференция "Проблемы материаловедения при проектировании, изготовлении и эксплуатации оборудования АЭС", 2-6 июня, 2014, теплоход Санкт-Петербург-Валаам-Мандроги-Санкт-Петербург.

Личный вклад автора

Лично автором разработаны дозо-временные зависимости радиационного и теплового охрупчивания материалов КР ВВЭР, проведены обработка первичных экспериментальных данных, статистический и регрессионный анализ, расчеты по моделированию влияния радиационно-индуцированных дефектов на упрочнение и охрупчивание исследуемых материалов. Основные результаты по выполненной работе подготовлены к публикации автором диссертации.

Автором, совместно с научным руководителем, развиты подходы и методы:

- учета влияния флакса нейтронов на радиационное охрупчивание корпусных сталей;
- моделирования теплового старения посредством нейтронного облучения корпусных сталей;
- установлены пороговые и предельные значения содержания примесных элементов, влияющих на радиационное охрупчивание сталей;
- постановка экспериментальных исследований и методология обработки результатов.

Публикации

По материалам диссертации опубликовано 14 работ в ведущих российских и зарубежных рецензируемых научных журналах и изданиях. Из них 4 работы опубликованы в рецензируемых журналах из перечня ВАК, 1 патент РФ и 6 работ в международных изданиях, включенных в международные базы цитируемости.

Объем и структура работы

Диссертация состоит из введения, 6 глав и заключения. Работа изложена на 170 страницах, включая 63 рисунка и 17 таблиц. Библиографический указатель состоит из 178 источников.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность работы по разработке моделей и получению дозо-временных зависимостей для прогнозирования охрупчивания материалов эксплуатируемых и перспективных корпусов реакторов ВВЭР. Перечислены цели диссертационной работы и решаемые задачи. Приведены основные положения, выносимые автором на защиту, представлена научная новизна полученных результатов и их практическая значимость.

В **первой главе** дан обзор литературы по изменению свойств материалов КР ВВЭР и западных PWR в процессе эксплуатации, проведен подробный анализ основных механизмов охрупчивания металлов с ОЦК решеткой. Показано, что основными факторами, влияющими на радиационное охрупчивание материалов КР, являются нейтронное облучение (флюенс и флукс нейтронов), температура облучения, химический состав материалов, а также металлургические особенности получения основного металла (поковка – деформированный металл) и металла сварного шва (литой металл). Дан анализ влияния каждого из факторов на охрупчивание материалов КР. Обозначены проблемы, имеющиеся на момент начала работы над диссертацией, сформулированы и обоснованы цели работы и решаемые задачи.

Вторая глава посвящена исследованию радиационного охрупчивания стали типа 15X2МФА (15X2МФА, 15X2МФА-А и 15X2МФА-А мод. А и мод. Б) и металла ее сварных швов. Стали 15X2МФА и 15X2МФА-А использовались для изготовления КР ВВЭР-440, а сталь 15X2МФА-А мод. А и Б предусматривается для изготовления КР новых реакторных установок, включая ВВЭР-ТОИ. Проведен анализ имеющихся нормативных дозовых зависимостей для описания радиационного охрупчивания стали типа 15X2МФА (15X2МФА,

15X2МФА-А) и металла ее сварных швов. Показано, что в имеющемся на момент начала работы над диссертацией нормативном документе ПНАЭ Г-7-002-86 влияние примесных элементов (фосфора и меди) на охрупчивание материала учитывается только для металла сварных швов (МШ) и не учитывается для основного металла (ОМ). Кроме того, не учитывается вклад радиационно-индуцированных дефектов кристаллической решетки, таких как точечные дефекты и дислокационные петли, в упрочнение материала и, как следствие, в его охрупчивание.

В диссертации сдвиг критической температуры хрупкости как для стали типа 15X2МФА, так и для металла ее сварных швов представляется в виде:

$$\Delta T_F = A_F \cdot \left(\frac{F}{F_0} \right)^n, \quad (1)$$

где F – флюенс нейтронов с энергией $E > 0,5$ МэВ, нейтр/м²; $F_0 = 1 \times 10^{22}$ нейтр/м²; n – коэффициент; A_F – коэффициент радиационного охрупчивания.

Зависимость (1) соответствует общепринятому виду и используется, в частности, в ПНАЭ Г-7-002-86.

Влияние основных примесных элементов на радиационное охрупчивание (РО) металла отражено в параметре $C_{eff} = C_P + k \cdot C_{Cu}$, который может рассматриваться как примесный эквивалент (C_P и C_{Cu} – содержание фосфора и меди соответственно). Как показано в диссертационной работе, существует пороговое значение примесного эквивалента C_{eff}^{th} , ниже которого сопротивление охрупчиванию не увеличивается (сдвиг критической температуры хрупкости не уменьшается).

В соответствии с введенными понятиями примесного эквивалента и порогового примесного эквивалента в диссертационной работе коэффициент радиационного охрупчивания представлен в следующем виде:

$$A_F = A_0 + A_1 \cdot \left[C_{eff} - C_{eff}^{th} \right], \quad (2)$$

где A_0 , A_1 – коэффициенты.

Вид зависимости (2) отвечает следующим допущениям и положениям:

- а) влияние фосфора и меди на охрупчивание металла взаимно независимое;
- б) вклад фосфора и меди в охрупчивание металла описывается подобными зависимостями;

с) абсолютно чистый металл (без примесей) охрупчивается под действием нейтронного облучения. Это охрупчивание связано с формированием в материале точечных дефектов и дислокационных петель. Поэтому, при $C_P = C_{Cu} = 0$, $\Delta T_F = A_0 \cdot \left(\frac{F}{F_0}\right)^n$.

На основании статистической обработки экспериментальных данных определены коэффициенты A_F и n в зависимостях (1) и (2).

Для стали типа 15X2МФА (15X2МФА, 15X2МФА-А и 15X2МФА-А мод. А и мод. Б) коэффициент $k = 0,046$, а пороговое значение примесного эквивалента $C_{eff}^{th} = 0,008\%$:

$$n = 0,483;$$

$$A_F = \begin{cases} 2,8 + 358 \cdot (C_P + 0,046 \cdot C_{Cu} - 0,008), & \text{если } C_P + 0,046 \cdot C_{Cu} \geq 0,008 \\ 2,8 & \text{, если } C_P + 0,046 \cdot C_{Cu} < 0,008 \end{cases}, \text{ } ^\circ\text{C} \quad (3)$$

Для прогнозирования радиационного охрупчивания с вероятностью 95% используется следующая зависимость $\Delta T_F^{95}(F)$:

$$\Delta T_F^{95} = (2,8 + 358 \cdot (C_P + 0,046 \cdot C_{Cu} - 0,008)) \cdot \left(\frac{F}{F_0}\right)^{0,483} + \omega, \text{ } ^\circ\text{C} \quad (4)$$

где ΔT_F^{95} – расчетное значение ΔT_F , которое превышает любое экспериментальное значение с вероятностью 95%; $\omega = 2\sigma = 22 \text{ } ^\circ\text{C}$.

Ранее считалось, что $C_{eff}^{th} = 0,002\%$, поэтому использовалась формула (5), тождественная полученной дозовой зависимости (4). Формула (5) вошла в руководящий документ Росэнергоатома МТ 1.2.1.15.0232-2014.

$$\Delta T_F^{95} = (0,651 + 358 \cdot (C_P + 0,046 \cdot C_{Cu} - 0,002)) \cdot \left(\frac{F}{F_0}\right)^{0,483} + \omega, \text{ } ^\circ\text{C} \quad (5)$$

где $\omega = 2\sigma = 22 \text{ } ^\circ\text{C}$.

Для металла сварных швов стали типа 15X2МФА коэффициент $k = 0,07$, а пороговое значение примесного эквивалента $C_{eff}^{th} = 0,01\%$:

$$n = 1/3;$$

$$A_F = \begin{cases} 6,4 + 610 \cdot (C_P + 0,07 \cdot C_{Cu} - 0,01), & \text{если } C_P + 0,07 \cdot C_{Cu} \geq 0,01 \\ 6,4 & \text{, если } C_P + 0,07 \cdot C_{Cu} < 0,01 \end{cases}, \text{ } ^\circ\text{C} \quad (6)$$

Для описания $\Delta T_F^{95}(F)$ используется зависимость:

$$\Delta T_F^{95} = (6,4 + 610 \cdot (C_P + 0,07 \cdot C_{Cu} - 0,01)) \cdot \left(\frac{F}{F_0}\right)^{1/3} + \omega, ^\circ\text{C} \quad (7)$$

где $\omega = 2\sigma = 20^\circ\text{C}$.

Результаты обработки экспериментальных данных ОМ и МШ в виде сопоставления экспериментальных и расчетных значений ΔT_F , нормированных на коэффициент радиационного охрупчивания, представлены на рисунках 1 и 2.

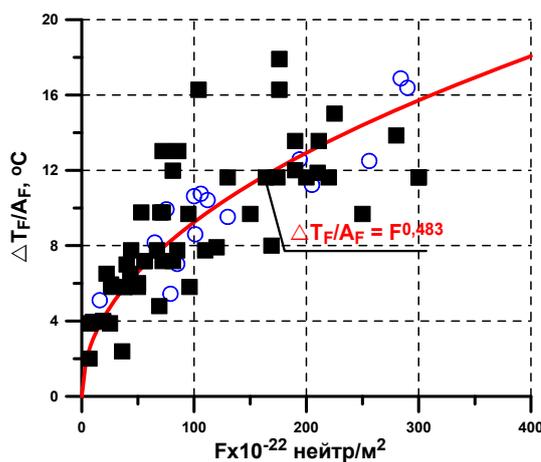


Рисунок 1 - Дозовая зависимость (1) с учетом (3) и экспериментальные данные стали типа 15X2МФА ($C_P \leq 0,013\%$, $C_{Cu} \leq 0,11\%$) в нормированном на коэффициент радиационного охрупчивания виде:

— - аппроксимация экспериментальных данных,
 ○ – «ОС КИ», ■ – ИП «ЦНИИ КМ Прометей».

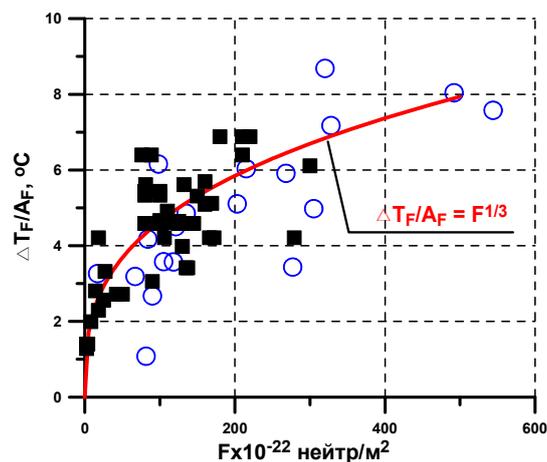


Рисунок 2 - Дозовая зависимость (1) с учетом (6) и экспериментальные данные МШ стали типа 15X2МФА ($C_P \leq 0,037\%$, $C_{Cu} \leq 0,21\%$) в нормированном на коэффициент радиационного охрупчивания виде: — - аппроксимация экспериментальных данных, ○ – «ОС КИ», ■ – ИП «ЦНИИ КМ Прометей».

Изучена кинетика охрупчивания стали типа 15X2МФА и металла ее сварных швов в диапазоне температур облучения от рабочих до технически достижимых на КР АЭУ на ледоколах и других судах. Показано, что коэффициент радиационного охрупчивания может быть представлен в виде произведения температурной части ($A_F^{\text{ТЕМП}}$) и части, зависящей только от содержания примесных элементов ($A_F^{\text{ХИМ}}$):

$$A_F = A_F^{\text{ТЕМП}} \cdot A_F^{\text{ХИМ}} \quad (8)$$

Для стали типа 15X2МФА и металла ее сварных швов при температуре облучения 270°C температурная компонента $A_F^{\text{ТЕМП}} = 1$. $A_F^{\text{ХИМ}}$ определяется по формулам (3) и (6) для ОМ и МШ соответственно. Зависимость $A_F^{\text{ТЕМП}}$ от температуры облучения представляется в виде убывающей экспоненциальной функции:

$$A_F^{\text{темп}} = 6,322 \cdot \exp(-0,00683 \cdot T_{\text{обл}}), \text{ } ^\circ\text{C} \quad (9)$$

Предложено в дальнейшем исследовать зависимость радиационного охрупчивания от температуры облучения с учетом особенностей влияния различных типов радиационных дефектов на охрупчивание материала. В общем случае, зависимость коэффициента радиационного охрупчивания от содержания легирующих и примесных элементов и температуры облучения может быть представлена в виде:

$$A_F = f_1(T_{\text{обл}}) \cdot f_2(A_0, z_1, \dots, z_n) + f_3(y_1, \dots, y_n) \quad (10)$$

где A_0 – параметр, контролирующий радиационное упрочнение матрицы; z_1, \dots, z_n – химические элементы, приводящие к радиационному упрочнению; y_1, \dots, y_n – элементы, определяющие неупрочняющий механизм охрупчивания за счет сегрегаций.

Структура зависимости (10) обусловлена тем обстоятельством, что радиационно-индуцированные сегрегационные процессы слабо чувствительны к $T_{\text{обл}}$ (по крайней мере, при $T_{\text{обл}} \leq 300 \text{ } ^\circ\text{C}$) и в основном определяются нейтронным облучением.

Введены понятия пороговых и предельных значений содержания фосфора и меди с точки зрения их влияния на радиационное охрупчивание материалов. Пороговое значение определяет минимальное содержание примесных элементов, ниже которого сопротивление металла радиационному охрупчиванию не увеличивается. Предельное значение определяет максимальное содержание примесных элементов, выше которого охрупчивание материала не уменьшается. Показано, что температура отпуска определяет предельное содержание меди. С понижением температуры отпуска предельное значение меди снижается, что связано с пределом растворимости этих элементов в металле. Выполнена оценка пороговых и предельных значений содержания фосфора и меди для стали типа 15X2МФА и металла ее сварных швов.

Показано, что при $T_{\text{обл}} \geq 270 \text{ } ^\circ\text{C}$ пороговые значения меди и фосфора $C_{\text{Cu}}^{\text{th}} = 0,06\%$ и $C_{\text{P}}^{\text{th}} = 0,005\%$ соответственно. Предельное содержание меди для КР ВВЭР может быть принято $C_{\text{Cu}}^{\text{lim}} \approx 0,25\%$. Предельное содержание фосфора не имеет ограничений сверху, по крайней мере, до величины 0,10%.

Третья глава посвящена исследованию радиационного охрупчивания стали типа 15X2НМФА (15X2НМФА-А и 15X2НМФА-А класс 1) и металла ее сварных швов. Эти стали используются для изготовления КР ВВЭР-1000, кроме того использование стали 15X2НМФА-А класс 1 предусмотрено для изготовления КР новых реакторных установок (ВВЭР-ТОИ). Показано, что сталь типа 15X2НМФА и металл ее сварных швов охрупчиваются в процессе эксплуатации как за счет нейтронного облучения, так и за счет

теплового старения. Допущение, принятое в ПНАЭ Г-7-002-86 об отсутствии влияния теплового старения ($\Delta T_t = 0$), при $F > 1 \times 10^{22}$ нейтр/м² и $T_{\text{обл}} = 250-300$ °С не является корректным. Охрупчивание за счет теплового старения происходит на фоне охрупчивания за счет нейтронного облучения. Вклады в охрупчивание, обусловленные нейтронным облучением и тепловым старением, могут быть приняты аддитивными, и поэтому ΔT_k может быть рассчитано по формуле:

$$\Delta T_k = \Delta T_t + \Delta T_F \quad (11)$$

На основании статистической обработки экспериментальных данных испытаний тепловых комплектов ОС (результаты испытаний ОС получены в НИЦ «Курчатовский институт») показано, что зависимость $\Delta T_t(t)$ имеет немонотонный характер, что по-видимому обусловлено выпадением и коагуляцией карбидов (как показано в работах ОАО НПО «ЦНИИТМАШ»). При выпадении карбидов металл упрочняется и, как следствие, охрупчивается. При дальнейшей эксплуатации происходит коагуляция карбидов, и свойства материала восстанавливаются полностью или частично. Как для стали типа 15Х2НМФА, так и для ее МШ $\max(\Delta T_t(t)) \approx 30$ °С. Для ОМ и МШ с низким содержанием никеля ($C_{Ni} < 1,3\%$) при $t \rightarrow \infty$ $\Delta T_t \rightarrow 0$. Для МШ с высоким содержанием никеля ($C_{Ni} > 1,5\%$) при $t \rightarrow \infty$ $\Delta T_t \approx 20$ °С. Такой результат может быть связан либо с сегрегационными механизмами охрупчивания, либо с отсутствием полной коагуляции карбидов.

Сдвиг критической температуры хрупкости $\Delta T_t(t)$ для ОМ и для МШ описывается формулой:

$$\Delta T_t(t) = \left(\Delta T_t^{\text{inf}} + b_T \exp\left(\frac{t_T - t}{t_{OT}}\right) \right) \cdot \text{th}\left(\frac{t}{t_{OT}}\right), \quad (12)$$

где ΔT_t^{inf} - сдвиг критической температуры хрупкости при $t \rightarrow \infty$; численные значения t_{OT} , t_T и b_T для ОМ и МШ приведены в тексте диссертации.

На основании статистической обработки экспериментальных данных испытаний облучаемых комплектов ОС (результаты испытаний ОС получены в НИЦ «Курчатовский институт»), учета индивидуальных зависимостей $\Delta T_t(t)$ для ОМ и МШ и использования формулы (11) были получены значения A_F и n в (1) для стали типа 15Х2НМФА и металла ее сварных швов, причем

$$n_{OM} = n_{MШ} = 0,8 \quad (13)$$

$$(A_F)_{MШ} > (A_F)_{OM} \quad (14)$$

Значение $n = 0,8$ соответствует результатам испытаний ускоренно облученных образцов, полученным в рамках ИП. В то же время, в работах, анализирующих радиационное охрупчивание стали типа 15X2НМФА и металла ее сварных швов на базе результатов испытаний ОС, получено значение $n = 1/3$. Данное противоречие объясняется отсутствием учета теплового старения (ΔT_t), вклад которого в ΔT_k значим при длительных выдержках при температуре эксплуатации, характерной для ОС. При ускоренном облучении, то есть при малом времени облучения, $\Delta T_t(t) \approx 0$ °С. Поэтому значение показателя степени $n=0,8$ при ускоренном облучении совпадает со значением показателя степени, определенным по результатам испытаний ОС в случае учета вклада теплового старения ΔT_t в радиационное охрупчивание материала ΔT_k (формула (11)).

Экспериментальный факт, что $(A_F)_{МШ} > (A_F)_{ОМ}$ связан с высоким содержанием Ni и Mn в МШ по сравнению с ОМ. Согласно имеющимся данным (см. Главу 1), при нейтронном облучении в материалах с повышенным содержанием Ni и Mn образуются Ni-Mn-Si преципитаты, приводящие к дополнительному упрочнению материала и, как следствие, к повышению его охрупчивания.

Таким образом, для адекватной оценки радиационного охрупчивания стали типа 15X2НМФА и металла ее сварных швов необходимо учитывать влияние легирующих элементов (Ni, Mn и Si), а также, в общем случае, влияние примесей (P и Cu).

В стали типа 15X2НМФА имеется весьма незначительное варьирование содержания Ni, Mn и Si. Для большинства материалов действующих и проектируемых КР содержание P и Cu мало, и им можно пренебречь. Исключение представляет ОМ КР Нововоронежской АЭС блок №5, где имеется повышенное содержание Cu.

В связи с изложенным, был принят следующий подход при определении коэффициента радиационного охрупчивания A_F для стали типа 15X2НМФА и металла ее сварных швов. Для ОМ принимается, что A_F не зависит от химического состава. Для МШ A_F зависит от содержания Ni, Mn и Si. Влияние повышенного содержания Cu учитывается при определении A_F как для ОМ, так и для МШ.

Построение зависимости A_F от Ni, Mn и Si для МШ базировалось на следующих основных положениях.

1. Вид зависимости A_F от концентрации никеля C_{Ni} , марганца C_{Mn} и кремния C_{Si} должен быть таковым, чтобы при условии $C_{Ni} = C_{Mn} = C_{Si} = 0$ величина A_F не вырождалась в ноль. Данное условие обусловлено тем обстоятельством, что радиационное

охрупчивание металла происходит не только за счет образования выделений вторичных фаз, но и за счет образования радиационных дефектов – точечных дефектов, дислокационных петель, а также сегрегации фосфора на межфазные границы карбид-матрица и границах их зерен. Эти процессы могут протекать и при отсутствии легирующих элементов в материале.

2. Одной из причин влияния Ni, Mn и Si на охрупчивание в чистых по примесям материалах является образование в процессе облучения кластеров, обогащенных этими элементами. Образование такого рода кластеров может происходить при отсутствии одного или двух упомянутых элементов. Следовательно, в качестве параметра, влияющего на A_F , может выступать параметр:

$$C_{\text{эКВ}} = C_{\text{Ni}} + k_1 \cdot C_{\text{Mn}} + k_2 \cdot C_{\text{Si}}, \quad (15)$$

где k_1 и k_2 -весовые коэффициенты, связанные с атомными радиусами указанных элементов.

Учитывая, что атомный радиус элементов Ni и Mn примерно одинаков, в формуле (15) можно принять $k_1=1$.

Рассмотренные выше положения 1 и 2 могут быть удовлетворены, если зависимость A_F от содержания Ni, Mn и Si представлена в виде:

$$A_F = \alpha_1 \cdot \exp(\alpha_2 \cdot C_{\text{эКВ}}), \quad (16)$$

где $C_{\text{эКВ}}$ рассчитывается по формуле (15) при $k_1=1$.

В результате обработки экспериментальных данных для металла сварных швов с высоким содержанием никеля ($C_{\text{Ni}} > 1,5\%$) были получены следующие значения коэффициентов, входящих в уравнения (15) и (16): $\alpha_1=0,703$, $\alpha_2=0,883$, $k_2=-3,885$.

Результаты обработки экспериментальных данных для МШ стали 15X2НМФА с высоким содержанием никеля ($C_{\text{Ni}} > 1,5\%$) в виде сопоставления экспериментальных и расчетных значений ΔT_F представлены на рисунке 3.

При статистической обработке экспериментальных данных для стали типа 15X2НМФА и ее МШ с низким содержанием никеля ($C_{\text{Ni}} \leq 1,34\%$) было получено значение

коэффициента радиационного охрупчивания $A_F=1,45^\circ\text{C}$. Экспериментальные данные и регрессионные зависимости представлены на рисунке 4.

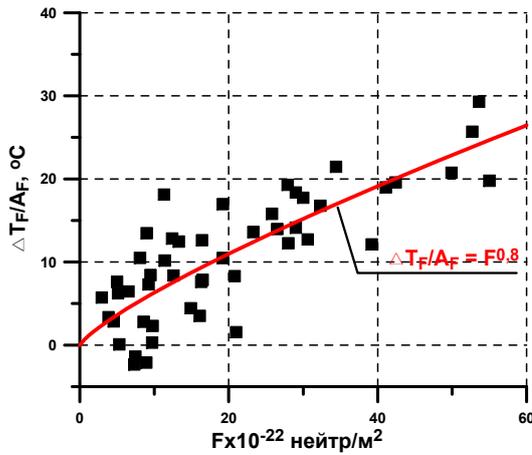


Рисунок 3 - Дозовая зависимость $\frac{\Delta T_F}{A_F} (F)$ для МШ стали типа 15Х2НМФА с высоким содержанием никеля:
 — - аппроксимация экспериментальных данных,
 ■ - экспериментальные данные для МШ с $C_{Ni} > 1,5\%$.

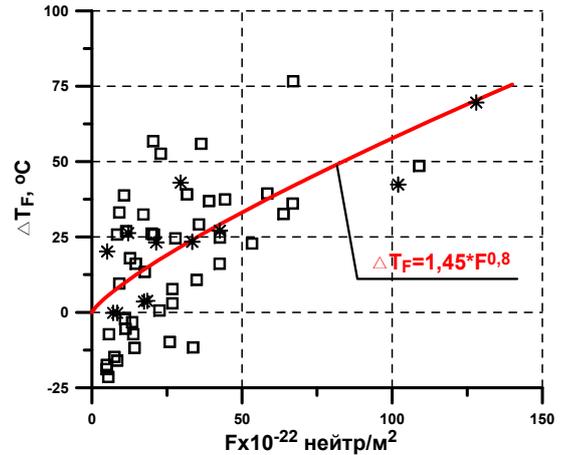


Рисунок 4 - Дозовая зависимость $\Delta T_F(F)$ для стали типа 15Х2НМФА и ее МШ с низким содержанием никеля:
 — - аппроксимация экспериментальных данных,
 □, * - экспериментальные данные для ОМ (□) и МШ с $C_{Ni} \leq 1,34\%$ (*).

Для консервативной оценки охрупчивания металла используется следующая зависимость:

$$\Delta T_K^{95} = \Delta T_t(t) + \Delta T_F(F) + \omega, \quad (17)$$

- для основного металла $\omega = 2\sigma = 38^\circ\text{C}$;
- для металла шва $\omega = 2\sigma = 20^\circ\text{C}$.

Проведен анализ влияния содержания меди на радиационное охрупчивание стали 15Х2НМФА и металла ее сварных швов. Для этих материалов при содержании меди свыше 0,10% построены дозо-временные зависимости, учитывающие эффект флакса.

При облучении «медленным» флаксом нейтронов и $C_{Cu} > 0,10\%$ для консервативной оценки охрупчивания получена следующая зависимость:

$$\Delta T_K^{95} = \begin{cases} A_F^{Ni,Mn,Si} \cdot (F/F_0)^{0,8} + 98,4 \cdot (C_{Cu} - 0,10) \cdot (F/F_0)^{1/3} + \Delta T_T + \omega, & \text{если } 0,10\% < C_{Cu} < C_{Cu}^{lim} \\ A_F^{Ni,Mn,Si} \cdot (F/F_0)^{0,8} + 14,76 \cdot (F/F_0)^{1/3} + \Delta T_T + \omega, & \text{если } C_{Cu} \geq C_{Cu}^{lim} \end{cases} \quad (18)$$

Сдвиг критической температуры хрупкости для стали 15Х2НМФА и ее МШ с $C_{Cu} > 0,10\%$ при облучении «быстрым» флаксом нейтронов представляется в виде:

$$\Delta T_K^{95} = \begin{cases} A_F^{Ni,Mn,Si} \cdot (F/F_0)^{0,8} + 42,7 \cdot (C_{Cu} - 0,10) \cdot (F/F_0)^{1/3} + \omega, & \text{если } 0,10\% < C_{Cu} < C_{Cu}^{lim} \\ A_F^{Ni,Mn,Si} \cdot (F/F_0)^{0,8} + 6,4 \cdot (F/F_0)^{1/3} + \omega, & \text{если } C_{Cu} \geq C_{Cu}^{lim} \end{cases} \quad (19)$$

В формулах (18), (19) под «медленным» флаксом понимается флакс нейтронов, типичный при облучении стенки КР ($\approx 10^{15}$ нейтр/м²·сек), под «быстрым» флаксом нейтронов понимается флакс, в 10-100 раз превышающий «медленный».

Поскольку подобные материалы применяются для КР АЭУ на ледоколах и других судах, была изучена кинетика их охрупчивания в диапазоне температур облучения от рабочих до технически достижимых на этих АЭУ. Получена температурная зависимость коэффициента радиационного охрупчивания, позволяющая оценить влияние температуры облучения на охрупчивание стали типа 15Х2НМФА и металла ее сварных швов.

Показано, что коэффициент радиационного охрупчивания, согласно формуле (8), может быть представлен в виде произведения температурной части ($A_F^{\text{темп}}$) и части, зависящей только от содержания легирующих элементов ($A_F^{\text{хим}}$). Для стали типа 15Х2НМФА и металла ее сварных швов:

$$A_F^{\text{хим}} = \exp(\alpha_2 \cdot C_{\text{экр}}) \quad (20)$$

$$A_F^{\text{темп}} = 31,83 \cdot \exp(-0,01307 \cdot T_{\text{обл}}), \text{ } ^\circ\text{C} \quad (21)$$

Четвертая глава посвящена исследованию влияния интенсивности нейтронного облучения (флакса нейтронов) на охрупчивание материалов корпусов реакторов ВВЭР в зависимости от доминирования того или иного механизма радиационного повреждения. Для получения оперативной информации о радиационном охрупчивании корпусных материалов обычно используются результаты испытаний ускоренно облученных образцов. При ускоренном облучении флакс нейтронов может в 10-100 раз превышать флакс нейтронов, действующий на стенку корпуса реактора. В связи с этим возникает задача по использованию результатов ускоренно облученных образцов для прогнозирования радиационного охрупчивания КР при эксплуатации.

Для достижения поставленной задачи были проведены теоретические исследования и сравнение экспериментальных данных по радиационному охрупчиванию различных материалов, облученных различным флаксом нейтронов. Для анализа были использованы следующие базы данных: база данных исследовательских программ и программ образцов-свидетелей, используемая в документах МАГАТЭ («МАГАТЭ БД»); база данных, полученная в рамках ИП ЦНИИ КМ «Прометей» («ИП Прометей»); база данных НИЦ «Курчатовский институт», полученная в рамках программ образцов-свидетелей («ОС КИ»).

Для исследования возможного влияния эффекта флакса нейтронов при реализации различных механизмов охрупчивания было исследовано два типа корпусных материалов: материалы КР ВВЭР-440 и материалы КР ВВЭР-1000.

Материалы КР ВВЭР-440 с низким содержанием меди и высоким содержанием фосфора были использованы для анализа флакс-эффекта, когда дислокационные петли и сегрегации контролируют охрупчивание материала. Материалы КР ВВЭР-440 (второе поколение) с низким содержанием меди и фосфора были использованы для анализа флакс-эффекта, когда охрупчивание материала, в основном, контролируется дефектами кристаллической решетки, включая дислокационные петли. Материалы КР ВВЭР-1000 имеют низкое содержание фосфора и меди и использовались для анализа флакс-эффекта, когда дислокационные петли и преципитаты (в основном Ni, Mn и Si) контролируют охрупчивание материала.

Выполнен анализ эффекта флакса с учетом различных механизмов охрупчивания материалов КР ВВЭР. Показано, что эффект флакса пренебрежимо мал, если радиационное охрупчивание контролируется упрочняющим механизмом, за счет образования дислокационных петель, и неупрочняющим, за счет образования сегрегаций (в основном фосфора) на межфазных границах. Данный результат связан с тем обстоятельством, что радиационно-индуцированный коэффициент диффузии вакансий D_F , определяющий диффузию фосфора, линейно зависит от флакса нейтронов, а величина сегрегации зависит от параметра ($D_F \cdot t$), то есть от флюенса нейтронов F . Таким образом, при одной и той же величине F величина сегрегации фосфора не зависит от флакса нейтронов. При доминировании упрочняющего механизма за счет образования барьеров в виде преципитатов или кластеров флакс может влиять на радиационное охрупчивание материалов корпусов реакторов. Основными элементами, образующими преципитаты, являются Ni, Mn и Cu.

Для определения флакс-эффекта каждая точка массива данных по ΔT_F , который соответствует одному флаксу нейтронов, была нормирована на величину A_F с учетом реального химического состава. Полученные массивы данных были обработаны зависимостью вида:

$$\frac{\Delta T_F}{A_F} = \eta \cdot \left(\frac{F}{F_0} \right)^n \quad (22)$$

где η – коэффициент, показывающий наличие или отсутствие флакс-эффекта: если $\eta^H \approx \eta^B$ тогда флакс-эффект отсутствует (η^H , η^B коэффициенты, соответствующие низкому и высокому уровню флакса нейтронов), если $\eta^H < \eta^B$ тогда флакс-эффект положительный, если $\eta^H > \eta^B$ тогда флакс-эффект отрицательный.

На основании экспериментальных данных для материалов корпусов реакторов типа ВВЭР (рисунок 5), а также для материалов корпусов реакторов типа PWR (стали A508,

SA533B) и для модельных сплавов (рисунок 6) установлено, что эффект флакса начинает проявляться, когда суммарное содержание никеля и марганца превышает 1,8% ($C_{Ni} + C_{Mn} \approx 1,8\%$). Выполненные оценки показывают, что для материалов корпусов реакторов ВВЭР-1000 при $C_{Ni} + C_{Mn} \geq 1,9\%$ увеличение флакса нейтронов в 100 раз по сравнению с флаксом, характерным для облучения корпусов реакторов, приводит к уменьшению ΔT_F менее, чем на 20%.

Такой вывод соответствует материалам с малым содержанием меди ($C_{Cu} \leq 0,12\%$). Поскольку медь мало растворима в железе, она оказывает более сильное влияние на радиационное охрупчивание материала, чем никель и марганец. Так, в работах А.М. Крюкова, А.А. Чернобаевой, М. Кирка, а также в Главе 3 показано, что эффект флакса начинает проявляться даже при относительно небольшом ее содержании $C_{Cu} \approx (0,10 \div 0,14) \%$.

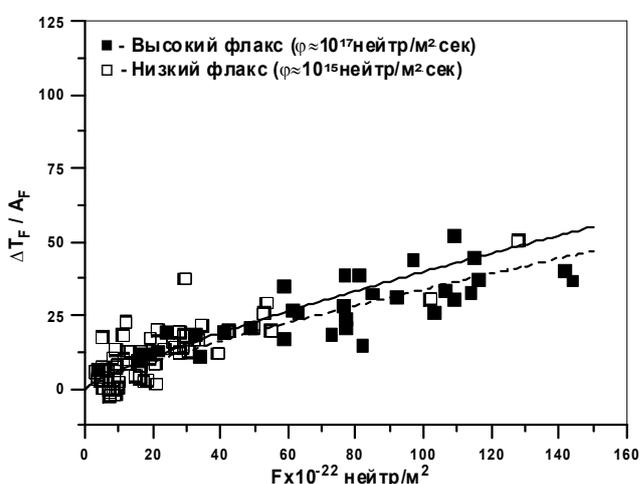


Рисунок 5 - Нормированная дозовая зависимость для металла сварных швов КР ВВЭР-1000 с $0,94 \leq C_{Ni} \leq 1,88\%$: \square – данные «ОС КИ» (низкий флакс $\phi \approx 10^{15}$ нейтр/м²·сек); \blacksquare – данные «ИП Прометей» (высокий флакс $\phi \approx 10^{17}$ нейтр/м²·сек); — зависимость (20) для $\phi \approx 10^{15}$ нейтр/м²·сек ($\eta = 1,01$); - - - - - зависимость (22) для $\phi \approx 10^{17}$ нейтр/м²·сек ($\eta = 0,85$).

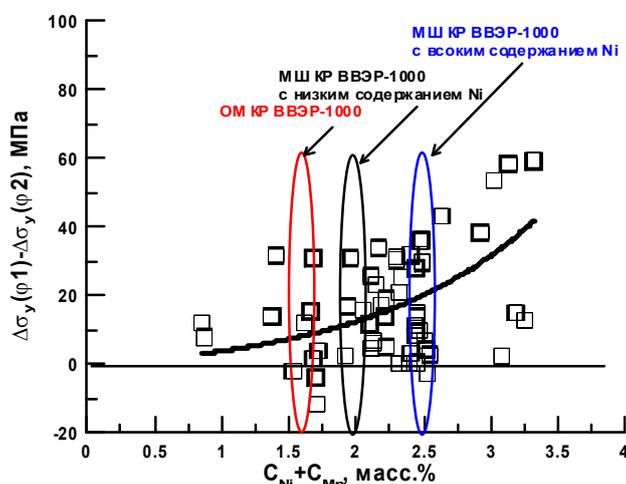


Рисунок 6 - Зависимость разности приращения предела текучести при низком и высоком уровне флакса от $(C_{Ni} + C_{Mn})$: \square – экспериментальные данные базы данных IVAR; — — — — — аппроксимация экспериментальных данных зависимостью $\Delta\sigma_{0,2}(\phi 1) - \Delta\sigma_{0,2}(\phi 2) = 3,128 \cdot [\exp(0,802 \cdot (C_{Ni} + C_{Mn})) - 1]$.

В пятой главе предложен новый метод для прогнозирования охрупчивания корпусных реакторных материалов за счет зернограницных сегрегаций фосфора, развитие которых протекает в необлучаемых частях КР типа ВВЭР при температуре эксплуатации.

Основная идея метода заключается в следующем. При облучении коэффициент диффузии вакансий, определяющий диффузию фосфора, увеличивается на порядки. При этом равновесная концентрация фосфора на границах зерен и межфазных границах зависит только от температуры и практически не зависит от нейтронного облучения. Следовательно,

оценку «фосфорного» охрупчивания за срок эксплуатации 60 лет и более можно выполнить на базе испытаний образцов, облученных в течение нескольких месяцев при $T_{\text{обл}} \approx T_{\text{экспл}}$ КР. Для снятия охрупчивания материала, обусловленного радиационным упрочнением (не характерным для теплового охрупчивания) и внутризеренными сегрегациями фосфора, перед испытанием образцов проводится их отжиг при температуре ниже температуры диссоциации зернограничных сегрегации и соответствующей температуре диссоциации внутризеренных сегрегаций и радиационных дефектов. Для определения параметров диффузионного процесса, например, таких как эффективная толщина границ зерен, определяется степень охрупчивания металла, состаренного при повышенных температурах. Следует отметить, что экспресс оценка теплового старения материалов КР только на базе результатов испытаний образцов, состаренных при повышенной температуре, не дает адекватных результатов, так как равновесная концентрация фосфора уменьшается с ростом температуры.

Метод базируется на результатах испытаний материала в двух состояниях: состаренного при повышенных температурах (относительно температуры эксплуатации) и отожженного после облучения. Для прогнозирования теплового старения корпусных реакторных сталей использованы уравнение МакЛина и зависимости, описывающие термоактивируемую и радиационно-индуцированную диффузию фосфора.

Проведено экспериментальное обоснование сильного ускорения образования зернограничных сегрегаций фосфора под воздействием нейтронного облучения. Показано, что после облучения и отжига доля хрупкого межзеренного разрушения достигает $\approx 70\%$ (рисунок 7). При этом для металла в исходном состоянии доля хрупкого межзеренного разрушения близка к 0%, а после облучения не превышает 12%.

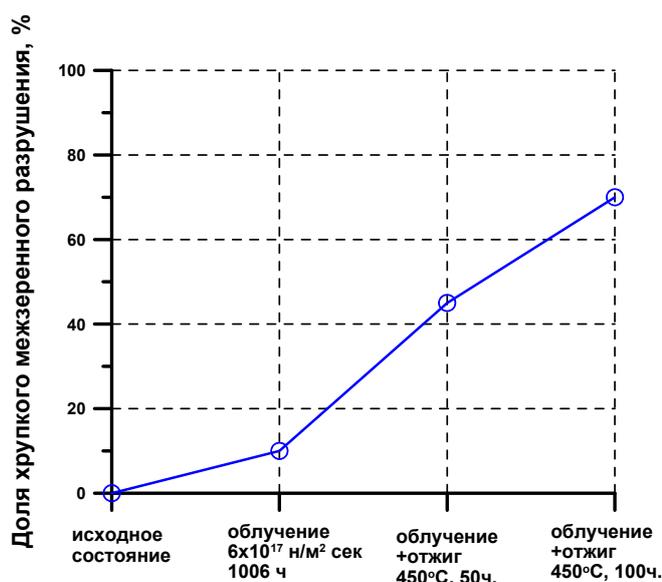


Рисунок 7 - Значение доли хрупкого межзеренного разрушения для образцов стали 15X2НМФА из средней трети толщины проката в исходном состоянии и состояниях после нейтронного облучения, после нейтронного облучения и последующих отжигов при температуре 450 °С в течение 50 и 100 часов.

Выполнены экспериментальные исследования по оценке теплового старения стали марки 15X2НМФА и ее МШ. На основании полученных экспериментальных данных и предложенного метода для времени $t = 5 \cdot 10^5$ часов (≈ 60 лет эксплуатации) даны оценки максимально возможной величины критической температуры хрупкости T_k .

Выполненные оценки показали, что при объемной концентрации фосфора менее 0,018%, $T_{\text{экспл}} = 320$ °С и времени $t = 5 \cdot 10^5$ часов (≈ 60 лет) при варьировании T_{k0} от -100 до 0 °С значения T_k за счет образования сегрегаций фосфора не превысят 5°С.

В шестой главе проведен анализ корреляции между сдвигом критической температуры хрупкости, определенной на образцах на ударный изгиб, и сдвигом референсной температуры, определенной при испытаниях на вязкость разрушения.

Как известно, основным критерием, определяющим целостность корпусов реакторов типа ВВЭР, является критерий хрупкого разрушения. Для оценки сопротивления хрупкому разрушению необходимо знать трансформацию $K_{JC}(T)$ кривой в процессе эксплуатации.

Для прогнозирования трансформации кривой $K_{JC}(T)$ на базе известных дозозависимых зависимостей $\Delta T_k(F, t)$ необходимо знать связь между ΔT_k и сдвигом некоторой референсной температуры, которая однозначно характеризует трансформацию кривой $K_{JC}(T)$. В настоящее время общепринято, что под референсной температурой (T_{100}) понимается температура, при которой решение $K_{JC} = 100 \text{ МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$ при вероятности разрушения $P_f = 0,5$ и толщине образца $B = 25$ мм.

Для анализа взаимосвязи между ΔT_{100} и ΔT_k было проведено обобщение имеющихся корреляционных соотношений, а также сопоставление экспериментальных данных, полученных на материалах PWR и ВВЭР. Показано, что зависимость ΔT_{100} от ΔT_k может быть представлены в виде $\Delta T_{100} = k \cdot \Delta T_k$.

Согласно исследованиям, проводимым применительно к материалам КР PWR, для основного металла коэффициент k варьируется в диапазоне 1,16÷1,19, а для металла сварных швов k варьируется в диапазоне 0,85÷1,00. Уровень критериальной энергии для ударных испытаний соответствовал 41 Дж.

Для основного металла ВВЭР-1000 $k = 0,87$, для металла сварных швов ВВЭР-1000 $k = 1,16$.

Как видно из представленного анализа, имеются противоположные тенденции для материалов КР ВВЭР и PWR. Для материалов КР PWR $k_{OM}(1,16 \div 1,19) > k_{MШ}(0,85 \div 1,00)$. Для материалов КР ВВЭР-440 $k_{OM}(1,2) = k_{MШ}(1,2)$. Для материалов КР ВВЭР-1000 $k_{OM}(0,87) < k_{MШ}(1,16)$.

Учитывая отсутствие какого-либо физического объяснения обнаруженных противоположных тенденций для материалов КР ВВЭР и PWR, вероятно, данное расхождение связано с ограниченным количеством используемых данных. Поэтому в общем случае наиболее реалистичной ситуацией является $k_{OM} = k_{MШ} = 1$.

Выводы по диссертации:

1. Получены новые дозовые зависимости, описывающие радиационное охрупчивание стали типа 15X2МФА (15X2МФА, 15X2МФА-А и 15X2МФА-А мод. А и мод. Б) и металла ее сварных швов. Стали 15X2МФА и 15X2МФА-А используются для изготовления КР ВВЭР-440, сталь 15X2МФА-А мод. А и Б предусматривается для изготовления КР новых реакторных установок, включая ВВЭР-ТОИ. Полученные дозовые зависимости позволяют прогнозировать сдвиг критической температуры хрупкости от флюенса нейтронов и концентрации примесных элементов (фосфора и меди).
2. Получены новые дозо-временные зависимости от флюенса нейтронов и времени, описывающие радиационное охрупчивание стали типа 15X2НМФА (15X2НМФА, 15X2НМФА-А и 15X2НМФА-А класс 1) и металла ее сварных швов при одновременном воздействии нейтронного облучения и температуры эксплуатации. Эти стали используются для изготовления КР ВВЭР-1000, кроме того, использование стали 15X2НМФА-А класс 1 предусмотрено для изготовления КР новых реакторных установок (ВВЭР-ТОИ). Показано, что сталь типа 15X2НМФА и металл ее сварных швов охрупчиваются в процессе эксплуатации как за счет нейтронного облучения, так и за счет теплового старения. Охрупчивание за счет теплового старения происходит на фоне охрупчивания за счет нейтронного облучения. Вклады в охрупчивание, обусловленные нейтронным облучением и тепловым старением, могут быть приняты как независимые и аддитивные. Полученные новые дозовые зависимости позволяют прогнозировать сдвиг критической температуры хрупкости от флюенса нейтронов, времени облучения, концентрации легирующих элементов (никель, марганец и кремний) и концентрации примесного элемента – меди.
3. Исследовано влияние температуры облучения на радиационное охрупчивание материалов корпусов реакторов ВВЭР. Получены зависимости коэффициента радиационного

охрупчивания от температуры облучения для сталей типа 15X2МФА и типа 15X2НМФА и металла их сварных швов.

4. Введены понятия пороговых и предельных значений содержания фосфора и меди с точки зрения их влияния на радиационное охрупчивание материалов. Пороговое значение определяет минимальное содержание примесных элементов, ниже которого сопротивление охрупчиванию не увеличивается (сдвиг критической температуры хрупкости не уменьшается). Предельное значение определяет максимальное содержание примесных элементов, выше которого сопротивление охрупчиванию не уменьшается (сдвиг критической температуры хрупкости не увеличивается).

5. Показано, что с понижением температуры отпуска предельное значение содержания меди может снижаться, что связано с пределом растворимости этого элемента в металле; температура отпуска определяет предельное содержание меди.

6. Выполнена оценка пороговых и предельных значений содержания фосфора и меди для материалов КР ВВЭР. Показано, что при $T_{\text{обл}} > 270$ °С пороговое значение меди $C_{\text{Cu}}^{\text{th}} = 0,06\%$, а фосфора $C_{\text{P}}^{\text{th}} = 0,005\%$. Предельное содержание меди для КР ВВЭР $C_{\text{Cu}}^{\text{lim}} \approx 0,25\%$. Предельное содержание фосфора не имеет ограничений сверху, по крайней мере, до величины 0,10%.

7. Исследовано влияние интенсивности нейтронного облучения (флакса нейтронов) на радиационное охрупчивание материалов корпусов реакторов ВВЭР при доминировании различных механизмов охрупчивания. Показано, что при контролировании радиационного охрупчивания упрочняющим механизмом за счет образования дислокационных петель и неупрочняющим сегрегационным механизмом эффект флакса нейтронов пренебрежимо мал. При доминировании упрочняющего механизма за счет образования барьеров в виде precipitates, флакс нейтронов может влиять на радиационное охрупчивание корпусных материалов, причем это влияние отрицательное: с увеличением флакса нейтронов ΔT_{F} уменьшается. Влияние флакса нейтронов начинает проявляться при суммарном содержании никеля и марганца $C_{\text{Ni}} + C_{\text{Mn}} \approx (1,8 \div 1,9) \%$. Выполненные оценки показывают: при $3,0\% \geq C_{\text{Ni}} + C_{\text{Mn}} \geq 1,9 \%$, увеличение флакса нейтронов в 100 раз приводит к уменьшению ΔT_{F} менее чем на 20 %. Такой вывод соответствует материалам с малым содержанием меди $C_{\text{Cu}} < 0,12 \%$.

8. Предложен метод прогнозирования теплового охрупчивания корпусных реакторных сталей за счет зернограницных сегрегаций фосфора, развитие которых протекает при температуре эксплуатации корпусов реакторов типа ВВЭР. Метод базируется на

экспериментально доказанном в рамках диссертации явлении – сильном ускорении диффузии фосфора под воздействием нейтронного облучения. Метод использует результаты испытаний материала, состаренного при повышенной, относительно температуры эксплуатации, температуре (для определения теплового коэффициента диффузии), а также результаты испытаний отожженного после облучения материала. Под облучением ускоренно образуются внутрзеренные и межзеренные сегрегации. В результате отжига происходит частичное восстановление свойств металла за счет снятия упрочнения и диссоциации внутрзеренных радиационных дефектов и сегрегаций фосфора. Таким образом, после облучения и отжига остаточное охрупчивание металла обусловлено только межзеренными сегрегациями фосфора, что соответствует процессу сегрегации фосфора при тепловом старении.

9. Выполнены оценки максимально возможного охрупчивания необлучаемых элементов КР ВВЭР-1000 (сталь типа 15Х2НМФА и металл ее сварных швов) за счет теплового старения при $T_{\text{экспл}} = 320 \text{ }^\circ\text{C}$ в течение $t = 5 \cdot 10^5$ часов (≈ 60 лет). Показано, что при варьировании T_{k0} от -100 до $0 \text{ }^\circ\text{C}$ значение T_k как стали типа 15Х2НМФА, так и ее МШ за счет теплового старения не превышает 5°C .

10. Выполнен анализ взаимосвязи между данными испытаний на ударную вязкость и данными испытаний на вязкость разрушения применительно к КР западных реакторов типа PWR и российских реакторов ВВЭР. Подтверждена корреляция между сдвигом критической температуры хрупкости (ΔT_k) и сдвигом референсной температуры (ΔT_{100}), позволяющая прогнозировать трансформацию температурной зависимости вязкости разрушения при эксплуатации КР ВВЭР на базе результатов испытаний образцов на ударную вязкость. Показано, что зависимость ΔT_{100} от ΔT_k может быть представлена в виде $\Delta T_{100} = k \cdot \Delta T_k$, при $k = 1$. T_{100} соответствует уровню $K_{Jc} = 100 \text{ МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$ при вероятности разрушения $P_f = 0,5$ и толщине образца $B = 25 \text{ мм}$.

11. Полученные дозовые и дозо-временные зависимости для материалов КР ВВЭР и выполненные оценки теплового старения необлучаемых частей КР ВВЭР вошли в Руководящие документы ОАО «Концерн Росэнергоатом» и в настоящее время используются для продления и обоснования срока эксплуатации действующих КР ВВЭР и обоснования срока эксплуатации проектируемых КР ВВЭР.

Основные результаты диссертационной работы представлены в следующих научных трудах:

1. Николаев В.А., Морозов А.М., **Юрченко Е.В.** О влияние легирующих примесных элементов на радиационное охрупчивание никельсодержащих корпусных материалов реакторов ВВЭР-1000. // Радиационное материаловедение и конструкционная прочность реакторных материалов. Юбилейный сборник, посвященный 100-летию со дня рождения И.В.Курчатова и А.П.Александрова и 35-летию лаборатории радиационного материаловедения ЦНИИ КМ «Прометей», СПб.: ФГУП «ЦНИИ КМ «Прометей», 2002г., с.200-211.
2. Николаев В.А., Морозов А.М., **Юрченко Е.В.** Влияние химического состава материалов корпусов реакторов ВВЭР-1000 на дозовую зависимость их радиационного охрупчивания. // Вопросы Атомной Науки и Техники, сер. «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение» (82), 2002г., №6, стр.76-83.
3. Марголин Б.З., Николаев В.А., **Юрченко Е.В.**, Николаев Ю.А., Ерак Д.Ю., Николаева А.В. Анализ охрупчивания материалов корпусов реакторов ВВЭР-1000 в процессе эксплуатации. // **Вопросы материаловедения.**-2009.-№4(60).-стр.108-123.
4. Margolin B.Z., Nikolaev V.A., **Yurchenko E.V.**, Nikolaev Yu.A., Erak D.Yu., Nikolaeva A.V. A new approach to description of inservice embrittlement of WWER-1000 reactor pressure vessel materials. // Strength of materials, January 2010, vol. 42, issue 1, pp.2-16.
5. Margolin B.Z., Nikolaev V.A., **Yurchenko E.V.**, Nikolaev Yu.A., Erak D.Yu., Nikolaeva A.V. Analysis of embrittlement of WWER-1000 RPV materials. // Int. Journ. PVP, 89 (2012), pp. 178-186.
6. Карзов Г.П., Николаев В.А., **Юрченко Е.В.** Дозовые зависимости радиационного охрупчивания российских материалов для корпусов энергетических реакторов ВВЭР-440. // **Вопросы материаловедения.**-2009.-№4(60).-стр.124-135.
7. Ahlstrand R., Margolin B., Akbashev I., Chyrko L., Kostylev V., **Yurchenko E.**, Piminiv V., Nikolaev Yu. , Koshkin V., Kharchenko V., Bukhanov V. TAREG2.01/00 project, Validation of neutron embrittlement for VVER 1000 and 440/213 RPVs, with emphasis on integrity assessment. // In J: Progress in Nuclear Energy, 58 (2012), p.52-57.
8. Марголин Б.З., **Юрченко Е.В.**, Морозов А.М., Пирогова Н.Е. Анализ эффекта флакса нейтронов применительно к радиационному охрупчиванию материалов корпусов реакторов ВВЭР. // **Вопросы материаловедения.**- 2012.-№2(70).-стр. 177-196.
9. Margolin B.Z., **Yurchenko E.V.**, Morozov A.M., Pirogova N.E. Analysis of relationship between the radiation embrittlement mechanisms and the influence of neutron flux in respect

- of WWER reactor pressure vessel materials. // Strength of materials, July 2013, vol. 45, issue 4, pp.406-423.
10. Margolin B.Z., **Yurchenko E.V.**, Morozov A.M., Pirogova N.E., Brumovsky M. Analysis of a link of embrittlement mechanisms and neutron flux effect as applied to reactor pressure vessel materials of WWER. // In: J.Nucl.Mater., 434 (2013), pp. 347-356.
 11. **Yurchenko E.V.**, Margolin B.Z., Morozov A.M., Pirogova N.E. Analysis of neutron flux effect as applied to radiation embrittlement of reactor pressure vessel materials of WWER. // Proceedings 19th European Conference on Fracture “Fracture Mechanics for Durability, Reliability and Safety”, Kazan, Russia, 26-31 August, 2012.
 12. Марголин Б.З., **Юрченко Е.В.**, Морозов А.М., Чистяков Д.А. Новый метод прогнозирования теплового старения сталей корпусов реакторов типа ВВЭР. // **Вопросы материаловедения.**-2013.-№3(75).-стр. 120-134.
 13. Margolin B.Z., **Yurchenko E.V.**, Morozov A.M., Chistyakov D.A. Prediction of the effects of thermal ageing on the embrittlement of reactor pressure vessel steels. // In: J.Nucl.Mater., 447 (2014) Issues 1-3, pp.107-114.
 14. Марголин Б.З., **Юрченко Е.В.**, Морозов А.М., Чистяков Д.А. Способ оценки степени охрупчивания материалов корпусов реакторов ВВЭР-1000 в результате термического старения. Патент Российской Федерации на изобретение №2431342, 2014г.

Подписано в печать 2015 г. Формат 60x48 1/16.

Печать – офсетная. Усл. п. л. 1,4. Уч.-изд. л. 1.05.

Тираж 90 экз. Заказ № X/XXX

Отпечатано в типографии ФГУП «ЦНИИ КМ «Прометей»

191015, Санкт-Петербург, улица Шпалерная, дом 49

Лицензия на полиграфическую деятельность

Лр № 020644 от 13 октября 1997