

## **Анализ связи между механизмами радиационного охрупчивания и влиянием флакса нейтронов применительно к материалам корпусов реакторов ВВЭР**

**Б. З. Марголин, Е. В. Юрченко, А. М. Морозов, Н. Е. Пирогова**

ФГУП ЦНИИ КМ “Прометей”, Санкт-Петербург, Россия

*Проанализирован эффект флакса нейтронов для материалов корпусов реакторов ВВЭР в случаях если доминируют различные механизмы охрупчивания. Используются данные по сдвигам критической температуры хрупкости, полученные в рамках программ образцов-свидетелей и исследовательских программ. Определены механизмы охрупчивания материалов, при которых эффект флакса практически отсутствует и при которых он значим. Для случая доминирования механизма сегрегации фосфора теоретически обосновано отсутствие эффекта флакса на основании теории радиационно-ускоренной диффузии.*

**Ключевые слова:** радиационное охрупчивание, материалы корпусов реакторов ВВЭР, флюенс и флакс нейтронов.

**Введение.** Во многих случаях необходимо оценить охрупчивание корпусных материалов на основании ускоренного облучения высоким флаксом нейтронов. Поэтому возникает вопрос о правомочности использования результатов испытания образцов, облученных высоким флаксом нейтронов, для прогнозирования охрупчивания материалов корпусов реакторов (КР) в течение срока их службы.

В различных литературных источниках имеется достаточно противоречивая информация об условиях реализации эффекта флакса для сталей с различным химическим составом и уровнем концентрации примесных элементов [1–9]. Например, в одних работах показано, что эффект флакса отсутствует [1] или, что знак этого эффекта зависит от величины флакса [2]. В других работах говорится о положительном эффекте флакса [3], т.е. с ростом флакса нейтронов сдвиг критической температуры хрупкости, полученный за счет нейтронного облучения, увеличивается. Известны также работы [4–8], свидетельствующие об отрицательном эффекте флакса, когда увеличение флакса нейтронов приводит к уменьшению сдвига критической температуры хрупкости. В обзорной работе [9] показано, что эффект флакса либо приводит к уменьшению сдвига критической температуры хрупкости, либо не оказывает на него влияния.

В связи с изложенным целью настоящей работы является исследование эффекта флакса применительно к корпусным материалам при доминировании различных радиационно-индуцированных дефектов.

Для достижения поставленной задачи было проведено сравнение экспериментальных данных по радиационному охрупчиванию (РО), взятых из различных баз данных: база данных исследовательских программ и программ образцов-свидетелей (ОС), используемая в документах МАГАТЭ (“МАГАТЭ БД”) [10]; база данных, полученная в исследовательских программах ЦНИИ

КМ “Прометей” (“ИП Прометей”) и база данных НИЦ “Курчатовский институт”, полученная в рамках программ образцов-свидетелей (“ОС КИ”) [11–13].

**1. Основные механизмы радиационного охрупчивания и исследованные материалы.** Радиационно-индуцированные дефекты приводят к охрупчиванию материала по двум механизмам: упрочняющему и неупрочняющему [14]. Суть упрочняющего механизма заключается в том, что охрупчивание металла сопровождается его упрочнением, т.е. увеличением предела текучести. Такой механизм связан с радиационными дефектами: дислокационными петлями и преципитатами. При неупрочняющем механизме охрупчивание металла не сопровождается его упрочнением. Этот механизм в основном связан с сегрегациями таких элементов, как фосфор и олово.

Охрупчивание металла по упрочняющему механизму имеет механическую и физическую природу [14]. Механическая природа охрупчивания заключается в увеличении действующих напряжений у вершины макротрещины (для одного и того же коэффициента интенсивности напряжений) и, как следствие, старте и развитии микротрещины скола (трещина Гриффитса) при более низкой нагрузке, действующей на макротрещину. Физическая природа охрупчивания состоит в образовании внутренних самоуравновешенных напряжений, облегчающих зарождение микротрещины скола, и увеличении вероятности образования дислокационных скоплений [14, 15].

Охрупчивание металла по неупрочняющему механизму имеет в основном физическую природу. Сегрегации примесей (в основном фосфора) локализуются на любых межфазных границах (например, на границе карбид–матрица) и на границах зерен. Обычно зарождение микротрещины происходит на такого рода границах. Сегрегации фосфора ослабляют прочность межфазных границ и приводят к более легкому зарождению микротрещины скола по сравнению с необлученными сталями.

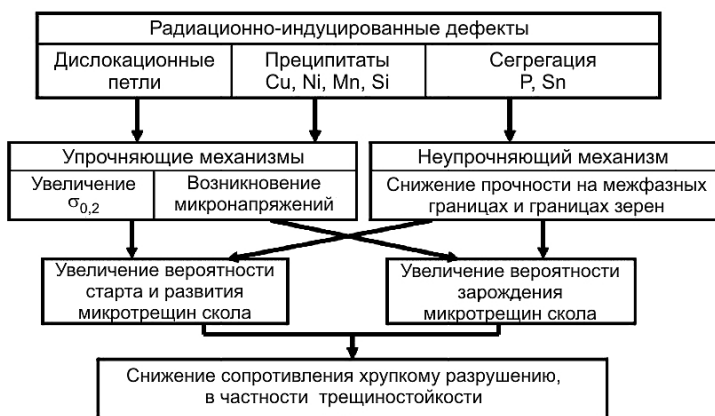


Рис. 1. Схема влияния радиационных дефектов на охрупчивание металла.

На рис. 1 представлена схема влияния радиационных дефектов на охрупчивание металла. Исследовали два типа корпусных сталей: 15X2МФА для корпусов реакторов ВВЭР-440 и 15X2НМФА для корпусов реакторов ВВЭР-1000. Сталь 15X2МФА обладает высокой устойчивостью к карбидному термическому охрупчиванию по сравнению со сталью 15X2НМФА. Это связано с

более высоким содержанием хрома в сталях КР ВВЭР-440 и, следовательно, более высоким содержанием карбидов. Вот почему в материалах КР ВВЭР-440 не происходит образования и коагуляции новых карбидов при длительных температурных выдержках, и эти материалы не подвержены термическому старению [16]. Отметим, что карбидное термическое старение проявляет слабую зависимость от флюенса нейтронов и в основном зависит от времени и температуры облучения [17, 18].

Материалы КР ВВЭР-440 первого поколения (сталь 15Х2МФА и ее металл швов) имели высокое содержание фосфора и меди, материалы КР второго поколения уже не содержали этих примесей. Следовательно, для материалов КР ВВЭР-440 эффект флакса может быть обусловлен кинетикой радиационно-индуцированных дефектов, к каковым относятся дислокационные петли, сегрегации фосфора и преципитаты меди.

Материалы КР ВВЭР-1000 (основной металл и металл швов) чувствительны к карбидному термическому старению [16–18]. Поэтому для анализа эффекта флакса материалов этих реакторов необходимо разделять карбидное термическое старение и радиационное охрупчивание. Эти материалы достаточно чистые по содержанию фосфора и меди, но имеют повышенное содержание никеля по сравнению со сталью 15Х2МФА. В данном случае эффект флакса может быть связан с кинетикой таких радиационно-индуцированных дефектов, как дислокационные петли и преципитаты Ni, Mn и Si.

Таким образом, материалы КР ВВЭР-440 с низким содержанием меди и высоким содержанием фосфора могут быть использованы для анализа эффекта флакса, когда дислокационные петли и сегрегации контролируют охрупчивание материала. Материалы КР ВВЭР-440 (второе поколение) с низким содержанием меди и фосфора могут быть использованы для анализа эффекта флакса, если охрупчивание материала в основном контролируется дислокационными петлями. Материалы КР ВВЭР-1000 имеют низкое содержание фосфора и меди и могут быть использованы для анализа эффекта флакса, когда дислокационные петли и преципитаты (в основном Ni, Mn и Si) контролируют охрупчивание материала. Далее каждый механизм РО будет рассматриваться отдельно с точки зрения анализа эффекта флакса.

## 2. Вид дозовых зависимостей для материалов КР ВВЭР.

2.1. *Материалы КР ВВЭР-1000.* Согласно [17, 18] дозовременная зависимость материалов КР ВВЭР-1000 представляется в виде

$$\Delta T_{cr}(F, t) = \Delta T_t(t) + \Delta T_F(F), \quad (1)$$

где  $\Delta T_{cr}$  – сдвиг критической температуры хрупкости  $T_{cr}$ , полученной по результатам испытаний на ударный изгиб (по критерию 47 Дж);  $\Delta T_t$  – сдвиг критической температуры хрупкости при воздействии температуры облучения (теплового старения);  $\Delta T_F$  – сдвиг критической температуры хрупкости вследствие нейтронного облучения.

Величина  $\Delta T_F$  описывается следующей зависимостью:

$$\Delta T_F = A_F \left( \frac{F}{F_0} \right)^n, \quad (2)$$

где  $F$  – флюенс нейтронов;  $F_0 = 1,0 \cdot 10^{22}$  нейтр/м<sup>2</sup>;  $A_F$  – коэффициент РО, °С;  $n$  – показатель степени.

Здесь и далее (если не указана другая величина) флюенс и флукс нейтронов соответствуют энергии нейтронов  $E > 0,5$  МэВ.

Величина  $\Delta T_t$  описывается формулой

$$\Delta T_t(t) = \left( \Delta T_t^{inf} + b_T \exp\left(\frac{t_T - t}{t_{OT}}\right) \right) \text{th}\left(\frac{t}{t_{OT}}\right), \quad (3)$$

где  $t$  – время старения, ч;  $\Delta T_t^{inf}$  – сдвиг критической температуры хрупкости при  $t \rightarrow \infty$ ;  $t_{OT}$ ,  $t_T$  и  $b_T$  – константы материала, зависящие от температуры старения.

Параметры уравнения (3) для данного класса материалов при температуре облучения  $T_{обл} = 290...300^\circ\text{C}$  приведены в [17, 18] и табл. 1.

Т а б л и ц а 1

**Значения коэффициентов уравнения (3) при температуре облучения  $T_{обл} = 290...300^\circ\text{C}$  для основного металла (ОМ) и металла шва (МШ) КР ВВЭР-1000**

Материал	$b_T, ^\circ\text{C}$	$t_{OT}, \text{ч}$	$t_T, \text{ч}$	$\Delta T_t^{inf}, ^\circ\text{C}$
ОМ	26,2	32700	40700	2
МШ с $C_{Ni} \leq 1,3\%$	26,2	32700	40700	2
МШ с $C_{Ni} > 1,5\%$	10,1	23200	40900	18

**Примечание.**  $C_{Ni}$  – содержание никеля, мас.%.

Экспериментальные данные по радиационному охрупчиванию в рамках “ИП Прометей” были получены в результате ускоренного облучения, т.е. при малых временах выдержки. Время облучения в основном не превышало  $\sim 1000$  ч. Поэтому в случае ускоренного облучения вклад температурного старения в  $\Delta T_{cr}(F, t)$  согласно формуле (3) является незначимым и им можно пренебречь ( $\Delta T_t \approx 0$ ). Для данных, полученных в рамках программ ОС, величиной  $\Delta T_t$ , рассчитываемой по формуле (3), пренебрегать нельзя ввиду длительности выдержки при температуре эксплуатации КР.

Согласно [17, 18] значения  $n$  и  $A_F$  в зависимости (2) могут быть рассчитаны при  $T_{обл} = 290...300^\circ\text{C}$  по следующим формулам:

для ОМ:

$$n = 0,8; \quad A_F = 1,45^\circ\text{C}; \quad (4)$$

для МШ:

$$n = 0,8; \quad A_F = \alpha_1 \exp(\alpha_2 C_{экр}), \quad ^\circ\text{C}. \quad (5)$$

Здесь

$$C_{экр} = \begin{cases} C_{Ni} + C_{Mn} - \alpha_3 C_{Si}, & \text{если } C_{Ni} + C_{Mn} - \alpha_3 C_{Si} \geq 0; \\ 0, & \text{если } C_{Ni} + C_{Mn} - \alpha_3 C_{Si} < 0, \end{cases} \quad (6)$$

где  $\alpha_1 = 0,703$ ;  $\alpha_2 = 0,883$ ;  $\alpha_3 = 3,885$ ;  $C_{Ni}$ ,  $C_{Mn}$ ,  $C_{Si}$  – содержание никеля, марганца и кремния, мас. %.

Коэффициенты в (2) и (3) были получены при обработке базы данных результатов испытаний ОС [17, 18].

**2.2. Зависимость коэффициента радиационного охрупчивания от температуры облучения.** Облучение материалов КР ВВЭР-1000 в программах “ОС КИ” проводилось при температуре  $295 \pm 5^\circ\text{C}$  флаксом нейтронов  $\varphi \approx 10^{15}$  нейтр/( $\text{м}^2 \cdot \text{с}$ ), облучение образцов в рамках “ИП Прометей” – при температуре  $180...310^\circ\text{C}$  флаксом нейтронов  $\varphi \approx 10^{17}$  нейтр/( $\text{м}^2 \cdot \text{с}$ ). Поскольку проанализировать влияние флакса можно при сопоставлении дозовых зависимостей, по крайней мере, для двух его уровней, для увеличения представительности базы данных, полученной в рамках “ИП Прометей”, целесообразно пересчитать сдвиг критической температуры хрупкости, соответствующий фактической температуре облучения, на температуру облучения ОС.

Согласно [17, 18] для основного металла КР ВВЭР-1000 коэффициент радиационного охрупчивания  $A_F$  не зависит от содержания легирующих элементов. В то же время следует отметить, что формулы (5) и (6) справедливы в широком диапазоне изменений параметра  $C_{\text{экв}}$ . В частности, при содержании легирующих элементов, характерном для стали 15Х2НМФА-А ( $C_{Ni} \approx 1,3\%$ ,  $C_{Mn} \approx 0,4\%$ ,  $C_{Si} \approx 0,25\%$ ), расчет по формулам (5) и (6) дает значение  $A_F = 1,34^\circ\text{C}$ , что очень близко к значению  $A_F = 1,45^\circ\text{C}$ , полученному для этой стали прямой обработкой экспериментальных данных. Таким образом, формулы (5) и (6) можно применять для расчета коэффициента радиационного охрупчивания как для МШ, так и для ОМ.

Поскольку параметр  $n$  в формуле (2) не зависит от температуры облучения, коэффициент радиационного охрупчивания может быть представлен в виде [19]

$$A_F = A_F^{\text{темп}} A_F^{\text{хим}}, \quad (7)$$

где  $A_F^{\text{темп}}$  – температурная часть коэффициента РО, которая зависит только от температуры облучения;  $A_F^{\text{хим}}$  – часть коэффициента РО, которая зависит только от содержания в металле сварного шва никеля, марганца и кремния.

При сопоставлении формулы (7) с (5) и обработке экспериментальных данных в нормированном виде  $\Delta T_F / (A_F^{\text{хим}} (F/F_0)^n)$  были получены зависимости:

$$A_F^{\text{темп}} = 31,83 \exp(-0,01307 T_{\text{обл}}), \quad ^\circ\text{C}; \quad (8)$$

$$A_F^{\text{хим}} = \exp(\alpha_2 C_{\text{экв}}). \quad (9)$$

Результаты обработки экспериментальных данных полученной зависимостью (8) представлены на рис. 2.

С использованием зависимости (8) был проведен пересчет значений  $\Delta T_F$  с фактической температуры облучения на температуру  $300^\circ\text{C}$  для материалов,

облучавшихся в рамках “ИП Прометей”. Температура, равная верхней границе температуры облучения ОС, была выбрана для того, чтобы оценить максимально возможное отрицательное влияние эффекта флкса нейтронов.

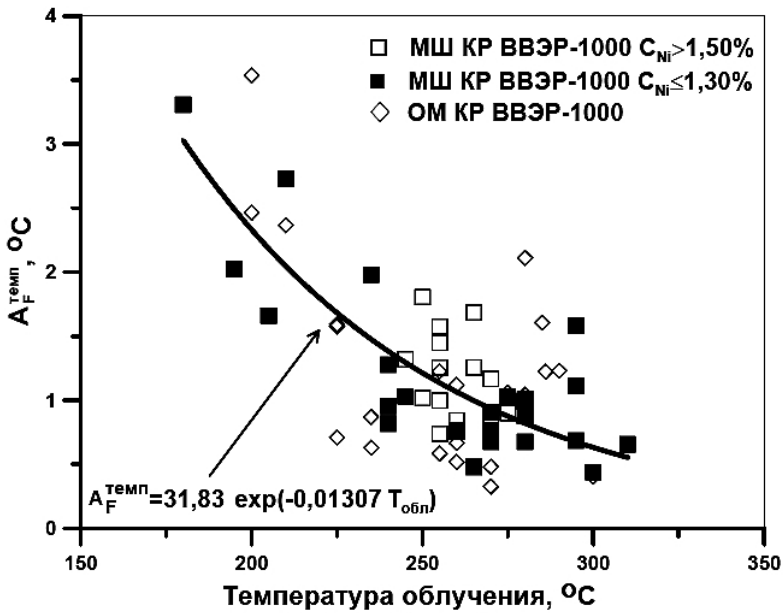


Рис. 2. Зависимость  $A_F^{TEMP}$  от температуры облучения для объединенного массива, включающего основной металл и металл сварных швов: ■, □, ◇ – экспериментальные данные, полученные в рамках мы “ИП Прометей”; линия – аппроксимация экспериментальных данных зависимостью (8).

Пересчет осуществлялся следующим образом:

$$\Delta T_F^{300} = \Delta T_F \frac{A_F^{TEMP}(300^\circ\text{C})}{A_F^{TEMP}(T_{obl})}, \text{ } ^\circ\text{C}, \quad (10)$$

где  $\Delta T_F$  – сдвиг температуры хрупкости при  $T_{obl} < 300^\circ\text{C}$ .

2.3. **Материалы КР ВВЭР-440.** Согласно [11, 20, 21] для материалов КР ВВЭР-440 термическое старение отсутствует, поэтому в формуле (1) величина  $\Delta T_t = 0$ , а  $\Delta T_F$  описывается зависимостью (2). Значения  $A_F$  и  $n$  в зависимости (2) определялись по результатам испытаний образцов, облучавшихся в рамках “ИП Прометей”.

В соответствии с [11, 21] для основного металла имеем  $n = 0,483$ ;

$$A_F = \begin{cases} 0,651 + 358(0,046C_{Cu} + C_P - 0,002), & \text{если } C_P \geq 0,002; \\ 0,651 + 358 \cdot 0,046C_{Cu}, & \text{если } C_P < 0,002; \end{cases} \text{ } ^\circ\text{C}, \quad (11)$$

где  $C_P$  и  $C_{Cu}$  – содержание фосфора и меди соответственно, мас.%.

Согласно [11, 20, 21] для металла шва КР ВВЭР-440 в зависимости (2) величина  $n = 1/3$ , в то время как коэффициент РО  $A_F$  вычисляется по формуле

$$A_F = \begin{cases} 6,4 + 610(C_P + 0,07 C_{Cu} - 0,01), & \text{если } C_P + 0,07 C_{Cu} \geq 0,01; \\ 6,4, & \text{если } C_P + 0,07 C_{Cu} < 0,01; \end{cases} \quad ^\circ\text{C}. \quad (12)$$

Облучение образцов в рамках “ИП Прометей” проводилось флаксом нейтронов  $\varphi \approx 10^{17}$  нейтр/(м<sup>2</sup>·с) при температуре облучения 270°С.

**3. Анализ влияния флакса нейтронов на охрупчивание материалов при доминировании различных механизмов.** С точки зрения влияния флакса нейтронов проведем ранжирование механизмов, приводящих к РО металла:

1) упрочнение материала вследствие образования дислокационных петель, назовем этот процесс механизм “А”;

2) упрочнение материала в результате образования барьеров в виде преципитатов (кластеров), обогащенных Cu, Ni, Mn и Si, – механизм “В”;

3) сегрегация элементов на любых межфазных границах или границах зерна, приводящая к снижению прочности этих границ, – механизм “С”. В большинстве практически важных случаев сегрегирующим элементом является фосфор.

Эффект флакса анализировали путем сопоставления результатов испытаний, взятых из следующих баз данных: “ИП Прометей”; “ОС КИ” и “МАГАТЭ БД”.

В рамках “ИП Прометей” материалы КР ВВЭР-440 облучались при температуре 260...275°С, материалы КР ВВЭР-1000 – при температуре 180...310°С флаксом нейтронов  $\varphi \approx 10^{17}$  нейтр/(м<sup>2</sup>·с). В “МАГАТЭ БД” собраны результаты испытаний материалов КР ВВЭР-440, облучавшихся при температуре 260...275°С флаксом нейтронов  $\varphi \approx 10^{15}$  и  $10^{16}$  нейтр/(м<sup>2</sup>·с). В базе данных “ОС КИ” материалы КР ВВЭР-440 облучались при температуре 260...275°С флаксом нейтронов  $\varphi \approx 10^{15}$  и  $10^{16}$  нейтр/(м<sup>2</sup>·с), материалы КР ВВЭР-1000 – при температуре 290...300°С флаксом нейтронов  $\varphi \approx 10^{15}$  нейтр/(м<sup>2</sup>·с).

Для определения эффекта флакса каждая точка массива данных  $\Delta T_F$ , который соответствует одному флаксу нейтронов, была нормирована на величину  $A_F$ . Полученные массивы данных обрабатывали зависимостью вида

$$\frac{\Delta T_F}{A_F} = \eta \left( \frac{F}{F_0} \right)^n, \quad (13)$$

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

3.1. **Анализ влияния флкса нейтронов при доминировании механизма “А”.** Под влиянием облучения генерируются и аннигилируют радиационно-индуцированные кластеры точечных дефектов (межузельные атомы, атомы внедрения и т.п., а также дислокационные петли). Этот процесс может быть описан уравнением

$$d\rho = \Omega dF - f(\rho)dt = \Omega dF - f(\rho)\frac{dF}{\varphi}, \quad (14)$$

где  $\rho$  – плотность кластеров;  $\Omega$  – константа;  $f(\rho)$  – некоторая монотонная функция  $\rho$ ; первое и второе слагаемые описывают генерацию и аннигиляцию кластеров соответственно.

Если допустить, что второе слагаемое незначимо по сравнению с первым слагаемым уравнения (14), то в этом случае плотность кластеров точечных дефектов  $\rho$  будет пропорциональна флюенсу нейтронов  $F$ . Основываясь на этом допущении и учитывая соотношения  $\rho_d = k\rho$  и  $\Delta\sigma_y \sim \sqrt{\rho_d}$  [22], где  $\rho_d$  – плотность дислокационных петель;  $k$  – некоторая константа, можно получить дозовую зависимость, не зависящую от флкса нейтронов  $\varphi$ , но зависящую от флюенса нейтронов  $F$ :  $\Delta T_F \sim \sqrt{F}$ . Такой вид зависимости был экспериментально установлен в одной из первых работ по радиационному материаловедению [23].

Уравнение (14) может быть представлено следующим образом:

$$\frac{d\rho}{dF} = \Omega - \frac{f(\rho)}{\varphi}. \quad (15)$$

Если в уравнении (15) второе слагаемое является значимым, из этого следует, что отношение  $f(\rho_d)/\varphi$  уменьшается, когда величина флкса нейтронов  $\varphi$  увеличивается. Следовательно,  $\rho$  и  $\Delta T_F$  увеличиваются с ростом флкса нейтронов  $\varphi$  для данного уровня флюенса нейтронов.

Таким образом, ускоренное облучение в рамках исследовательских программ должно либо приводить к более высокому значению  $\Delta T_F$  по сравнению со сдвигом критической температуры хрупкости, полученному на ОС, облучавшихся более низким флксом, либо не вызывать изменения  $\Delta T_F$ .

Следует отметить, что механизм “А” будет оказывать доминирующее влияние на РО материала, если механизмы “В” и “С” не реализуются. Такая ситуация характерна для сталей, в которых отсутствуют элементы, приводящие к образованию преципитатов и сегрегаций. К указанным сталям можно отнести сталь 15X2МФА-А с низким содержанием примесных элементов – меди и фосфора.

На рис. 3 приведено сопоставление результатов испытаний образцов стали 15X2МФА-А с низким содержанием меди ( $C_{Cu} \leq 0,11\%$ ) и фосфора ( $C_P \leq 0,013\%$ ). Было рассмотрено три уровня флкса нейтронов:  $10^{15}$ ,  $10^{16}$  и  $10^{17}$  нейтр/(м<sup>2</sup> · с). Видно, что влияния флкса нейтронов не обнаруживается,

так как зависимости  $\frac{\Delta T_F}{A_F}(F)$  для разных уровней флкса нейтронов практи-



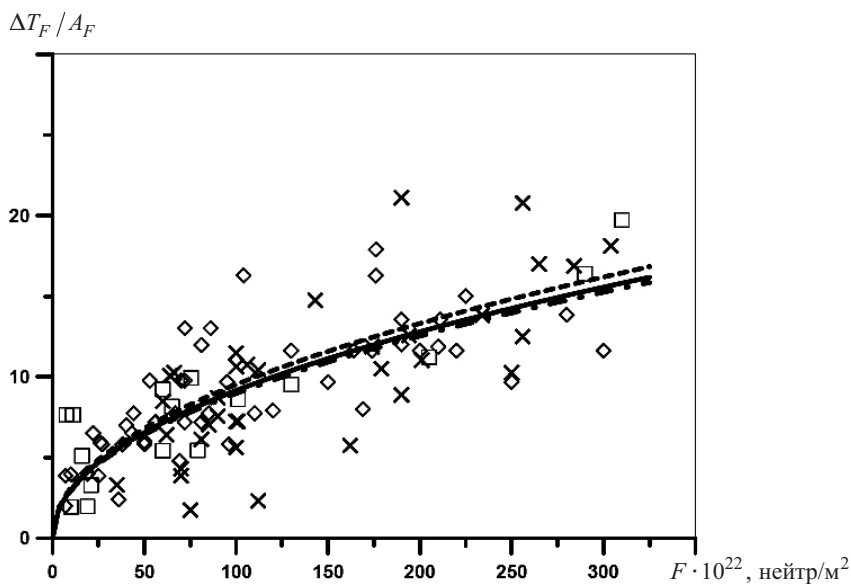


Рис. 3. Нормированная дозовая зависимость для стали 15X2МФА-А с содержанием  $C_{Cu} \leq 0,11\%$  и  $C_P \leq 0,013\%$ . Здесь и на рис. 5:  $\square$  – данные “ОС КИ” и “МАГАТЭ БД” (низкий уровень флюкса  $\varphi \approx 10^{15}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ ));  $\times$  – данные “ОС КИ” и “МАГАТЭ БД” (средний уровень флюкса  $\varphi \approx 10^{16}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ ));  $\diamond$  – данные “ИП Прометей” (высокий уровень флюкса  $\varphi \approx 10^{17}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ )). (Сплошная, штрихпунктирная и штриховая линии – (13) соответственно для высокого ( $\eta = 0,99$ ), среднего ( $\eta = 0,97$ ) и низкого ( $\eta = 1,03$ ) уровней флюкса нейтронов.)

чески совпадают. Это свидетельствует о слабом влиянии фактора времени на процесс аннигиляции кластеров точечных дефектов и, значит, на плотность дислокационных петель.

Иными словами, если доминирующим механизмом РО является упрочнение вследствие образования дислокационных петель (механизм “А”), то эффектом флюкса можно пренебречь. Справедливость данного заключения, по всей видимости, ограничена изменениями флюкса нейтронов не более чем в 100 раз. Дело в том, что  $T_{обл}$  оказывает сильное влияние на РО металла. Следовательно, процесс аннигиляции дислокаций чувствителен к  $T_{обл}$ . Поскольку аннигиляция дислокаций – термоактивируемый процесс, в общем случае он чувствителен ко времени облучения. Однако, чтобы обнаружить влияние времени облучения на РО металла, вариация флюкса нейтронов должна быть очень большой, вероятно, больше, чем в  $10^2$  раз.

Следует отметить, что такие элементы, как Si и Mn, используемые для производства различных сталей, в том числе 15X2МФА и 15X2НМФА, образуют преципитаты [24]. Вклад преципитат Si и Mn в радиационное упрочнение, по-видимому, небольшой, так как концентрация этих элементов в исследуемых материалах невелика (не более 0,5%), а растворимость более высокая, чем растворимость Cu [25].

**3.2. Анализ влияния флюкса нейтронов при доминировании механизма “С”.** Рассмотрим влияние флюкса нейтронов на механизм “С”. В общем случае сегрегация какого-либо элемента на стоках, каковыми являются межфаз-

ные границы и границы зерен, происходит в результате диффузионного процесса. Диффузия как типичный термоактивируемый процесс зависит от температуры и времени. Типичным сегрегационным процессом, приводящим к охрупчиванию металла и зависящим от температуры и времени, является тепловая хрупкость II рода, или отпускная хрупкость [26]. При фиксированной температуре  $\Delta T_{cr}$  повышается с увеличением времени выдержки.

Казалось бы, аналогичные закономерности должны соответствовать РО металла при нейтронном облучении, т.е. при фиксированном флюенсе нейтронов с уменьшением флакса нейтронов и, следовательно, с повышением времени экспозиции РО металла, мерой которого является  $\Delta T_F$ , должно увеличиваться. В то же время существуют достаточно представительные экспериментальные данные, согласно которым между условиями реализации сегрегационных процессов при тепловом старении и нейтронном облучении имеется принципиальное отличие.

В работе [25] представлены экспериментальные данные, свидетельствующие об охрупчивании стали 15X2МФА при использовании неупрочняющего механизма "С". Облучение проводили в реакторе ВВР-М (ПИЯФ, г. Гатчина) флаксом  $\varphi \approx 10^{17}$  нейтр/(м<sup>2</sup>·с) ( $E > 1$  МэВ) при температуре облучения  $T_{обл} = 50...80^\circ\text{C}$ . Было установлено, что при этой температуре наблюдается сильное влияние содержания фосфора  $C_P$  на  $\Delta T_F$ , при этом  $\Delta\sigma_{0,2}$  не изменяется с увеличением его концентрации (рис. 4).

Факт такого влияния фосфора на  $\Delta T_F$  при достаточно низкой температуре облучения не может быть объяснен с точки зрения классических диффузионных процессов, так как при этой температуре облучения диффузионные процессы, несомненно, происходят медленнее на несколько порядков, чем при  $T_{обл} = 290...300^\circ\text{C}$ . Следовательно, фосфор доставляется к межфазным границам и (или) к границам зерен по какому-то другому механизму, отличающемуся от классического термоактивированного диффузионного процесса. И этот механизм связан напрямую не со временем, а с повреждающей дозой или, в первом приближении, с флюенсом нейтронов. По всей видимости, трансляция фосфора к межфазным границам происходит через первичные каскады, образующиеся при соударении нейтрона с металлом. Трансляция фосфора внутри каскада происходит быстрее, чем по классическому диффузионному механизму. Каскады являются первопричиной появления различных типов дефектов кристаллической решетки при облучении. Поскольку дефекты решетки за счет каскадов предпочтительно образуются на межфазных границах или на границах зерен [27] (там, где связь между атомами матрицы ослаблена), концентрация фосфора на этих границах связана с параметром, контролирующим количество каскадов, т.е. с флюенсом нейтронов. Подобный механизм ускоренной трансляции фосфора за счет комплекса вакансий, образующихся при нейтронном облучении, изучен в работах [28, 29].

Рассмотрим этот механизм с точки зрения теории радиационно-индуцированной диффузии. В качестве меры охрупчивания примем концентрацию фосфора на межфазных границах (например, на границах карбид–матрица) и (или) на границах зерен. Для оценки сегрегации будем использовать уравнения Маклина [30]:

$$(C_P^t - C_P^0) = (C_P^\infty - C_P^0) \left[ 1 - \exp\left(\frac{4D_P t}{\gamma^2 d^2}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{2\sqrt{D_P t}}{\gamma d}\right) \right], \quad (16)$$

где  $C_P^0$ ,  $C_P^t$ ,  $C_P^\infty$  – концентрация фосфора на межфазных границах и (или) на границах зерен в начальный момент времени ( $t = 0$ ), при времени, равном  $t$ , и  $t = \infty$  (равновесная концентрация фосфора при заданной температуре) соответственно;  $D_P$  – коэффициент диффузии фосфора при температуре  $T$ ;  $d$  – толщина адсорбционной зоны;  $\gamma = C_P^\infty / C_V$  ( $C_V$  – объемная концентрация фосфора).

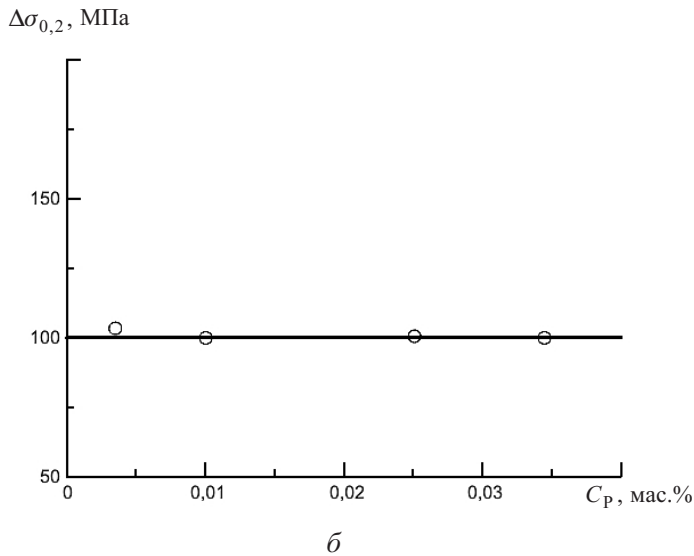
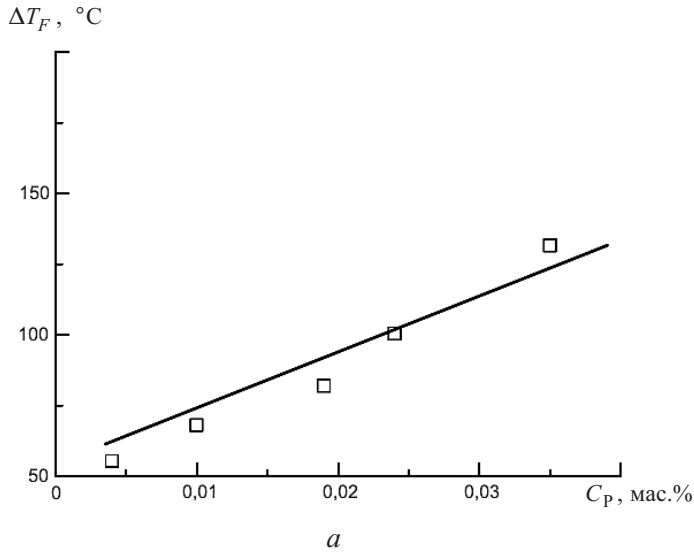


Рис. 4. Влияние содержания фосфора в стали 15Х2НМФА на  $\Delta T_F$  (а) и  $\Delta\sigma_{0,2}$  (б) после нейтронного облучения [25]:  $\square$  –  $T_{\text{обл}} = 50...80^\circ\text{C}$ ;  $F = (30...50) \cdot 10^{22}$  нейтр/м<sup>2</sup>;  $\circ$  –  $T_{\text{обл}} = 50...80^\circ\text{C}$ ;  $F = 20 \cdot 10^{22}$  нейтр/м<sup>2</sup>.

Примем связь между  $T_F$  и  $C_P^t$  в виде

$$T_F = \alpha + \beta C_P^t, \quad (17)$$

где  $\alpha$  и  $\beta$  – некоторые константы материала.

Зависимость (17) может быть представлена в виде  $\Delta T_F = \beta(C_P^t - C_P^0)$ , что полностью согласуется при  $C_P^0 = 0$  с зависимостью, используемой в работах [31, 32].

С помощью формул (16) и (17) получим

$$\Delta T_F = (T_F^\infty - T_{k0}) \left[ 1 - \exp\left(\frac{4D_P t}{\gamma^2 d^2}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{2\sqrt{D_P t}}{\gamma d}\right) \right], \quad (18)$$

где  $T_F^\infty$  – значение  $T_F$  при  $t = \infty$ ;  $T_{k0}$  – значение  $T_k$  для материала в исходном состоянии.

В общем случае  $T_F^\infty$  зависит от температуры облучения, так как  $C_P^\infty$  является функцией температуры [32]. Из формулы (18) следует, что при заданном значении  $T_{k0}$  и температуре облучения величина  $\Delta T_F$  зависит от параметра  $\Lambda$ :

$$\Lambda = Dt. \quad (19)$$

При облучении перенос компонента (какого-либо элемента) может осуществляться как по вакансионному механизму, так и по межузельному. Как показано в работах [25, 33–36], диффузия фосфора (как примеси замещения) под облучением происходит в основном по вакансионному механизму. Поэтому можно считать, что в формуле (18)  $D_P = D$ , где  $D$  – коэффициент диффузии вакансий. Согласно [34, 35, 37] величина  $D$  может быть рассчитана по формуле

$$D = D_F + D_T, \quad (20)$$

где  $D_F$  – коэффициент диффузии сверхравновесных вакансий, обусловленный только нейтронным облучением;  $D_T$  – коэффициент диффузии равновесных вакансий, обусловленный только тепловыми процессами.

При температурах облучения  $T_{\text{обл}} \leq 320^\circ\text{C}$  и флюксах нейтронов  $\varphi \geq 1 \cdot 10^{15}$  нейтр/(м<sup>2</sup>·с) имеем  $D_T \ll D_F$  [33–35, 37]. Поэтому можно принять, что при указанных условиях облучения  $D \approx D_F$ .

Зависимость  $D_F$  от флюкса нейтронов  $\varphi$  может иметь различный функциональный вид. Если рекомбинацией точечных дефектов можно пренебречь, и дефекты, образованные при облучении, мигрируют к фиксируемым стокам, основными из которых являются дислокации, то

$$D_F \sim \frac{\varphi}{\rho_S}, \quad (21)$$

где  $\rho_S$  – плотность стоков точечных дефектов; в первом приближении  $\rho_S$  может быть принята равной плотности дислокаций.

Для случая, когда доминирует рекомбинация точечных дефектов [34, 35, 37], имеем

$$D_F \approx \sqrt{\varphi}. \quad (22)$$

Вид зависимости  $D_F(\varphi)$  может быть определен посредством расчета параметра  $Q$  [34, 35]:

$$Q = \frac{4\varepsilon\varphi\mu_R}{D_T^0 \rho_S^2}, \quad (23)$$

где  $\varepsilon$  – параметр оценки эффективности генерации точечных дефектов в металлах и сплавах при каскадообразующем облучении;  $\mu_R$  – коэффициент рекомбинации мигрирующих межузельных атомов с вакансиями;  $D_T^0$  – предэкспоненциальный множитель коэффициента диффузии вакансий.

При  $Q \ll 1$  доминируют фиксированные стоки, и зависимость  $D_F(\varphi)$  может быть принята в виде (21), при  $Q \gg 1$  – рекомбинация точечных дефектов, и зависимость  $D_F(\varphi)$  представляется в виде (22).

Учитывая, что для КР типа ВВЭР доза облучения 1 сна соответствует  $\sim 1 \cdot 10^{25}$  нейтр/м<sup>2</sup>, вариация  $\varphi$  при облучении ОС и образцов по исследовательским программам происходит в диапазоне  $10^{-9} \dots 10^{-7}$  сна/с. Согласно [34, 35] максимальная величина  $\varepsilon = 0,1$  сна<sup>-1</sup>;  $\mu_R = 8 \cdot 10^{20}$  м<sup>-2</sup>;  $\rho_S = 10^{14} \dots 10^{13}$  м<sup>-2</sup>;  $D_T^0 = 5 \cdot 10^{-5}$  м<sup>2</sup>/с. Тогда получим  $Q = 6,4 \cdot 10^{-8}$ , т.е.  $Q \ll 1$ .

Таким образом, из представленных оценок видно, что для КР ВВЭР справедлива зависимость (21). Подставив (21) в (19), получим, что параметр  $\Lambda \sim F$ . Это свидетельствует о том, что если доминирует неупрочняющий фосфорный механизм, то  $\Delta T_F$  зависит только от флюенса нейтронов и не зависит от флакса нейтронов.

Экспериментальным доказательством отсутствия влияния флакса нейтронов на  $\Delta T_F$  при реализации механизма “С” являются данные по радиационному охрупчиванию металла сварных швов КР ВВЭР-440. Рассматриваемая база данных по  $\Delta T_F$  для металла сварных швов стали 15Х2МФА включает данные с высоким содержанием фосфора в диапазоне  $0,007\% \leq C_P \leq 0,032\%$ . На рис. 5 представлено сопоставление экспериментальных результатов для трех уровней флакса нейтронов.

Проведенные расчеты показывают, что  $\eta = 1,06$  для  $\varphi \approx 10^{15}$  нейтр/(м<sup>2</sup> · с), в то время как  $\eta = 1,03$  для  $\varphi \approx 10^{16}$  нейтр/(м<sup>2</sup> · с) и  $\eta = 0,99$  для  $\varphi \approx 10^{17}$  нейтр/(м<sup>2</sup> · с) – рис. 5. Следовательно, даже при высоком содержании фосфора ( $C_P \leq 0,032\%$ ) в металле сварных швов стали 15Х2МФА эффект флакса не обнаруживается.

Отметим, что наряду с повышенным содержанием фосфора в металле шва содержание меди для некоторых проб также находится на высоком уровне ( $C_{Cu} \leq 0,23\%$ ). Тем не менее приведенные данные, в том числе полученные при высоком содержании меди, свидетельствуют об отсутствии отрица-

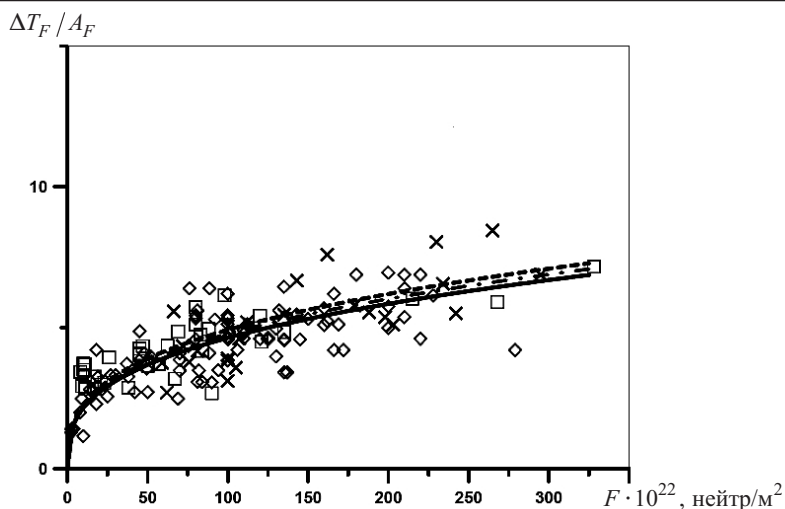


Рис. 5. Нормированная дозовая зависимость для металла сварного шва стали 15X2MФА с содержанием  $0,02\% \leq C_{Cu} \leq 0,23\%$  и  $0,007\% \leq C_P \leq 0,032\%$ . (Сплошная, штрихпунктирная и штриховая линии – зависимость (13) соответственно для высокого ( $\eta = 0,99$ ), среднего ( $\eta = 1,03$ ) и низкого ( $\eta = 1,06$ ) уровней флюенса нейтронов.)

тельного эффекта флюенса. Согласно работе [4] высокое содержание меди приводит к появлению отрицательного эффекта флюенса. По-видимому, при высоком содержании фосфора вклад меди мал и, значит, вклад флюенса нейтронов незначителен.

Таким образом, под воздействием нейтронного облучения концентрация фосфора на межфазных границах зерен в основном контролируется флюенсом нейтронов и практически не зависит от флюенса нейтронов.

Из представленного анализа видно, что при контроле РО механизмами “А” и “С” эффект флюенса пренебрежительно мал. Следовательно, если эффект флюенса существует, он связан с механизмом “В”.

**2.3. Анализ влияния флюенса нейтронов при доминировании механизма “В”.** Рассмотрим влияние флюенса нейтронов, когда механизм “В” доминирует. Результаты обработки экспериментальных данных, взятых из базы данных “ОС КИ” (низкий флюенс  $\varphi \approx 10^{15}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ )) и “ИП Прометей” (высокий флюенс  $\varphi \approx 10^{17}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ )), с помощью формулы (13) представлены в табл. 2.

Из полученных результатов видно, что для основного металла флюенс нейтронов практически отсутствует (рис. 6), для металла шва существует некоторое его влияние. Подобные тенденции влияния эффекта флюенса были получены на другой исследовательской базе данных (ускоренное облучение) в работе [6].

Сопоставление значений  $\eta$  для МШ с  $C_{Ni} > 1,5\%$  и  $C_{Ni} \leq 1,3\%$  свидетельствует о практически одинаковом влиянии флюенса нейтронов на РО при различном содержании никеля в диапазоне  $0,94\% \leq C_{Ni} \leq 1,88\%$ . Действительно, из табл. 2 видно, что значения  $\eta$  для  $C_{Ni} > 1,5\%$  и  $C_{Ni} \leq 1,3\%$  незначительно отличаются друг от друга. Поэтому  $\eta$  может быть определено для объединенного массива данных МШ, для которого содержание никеля варьируется в интервале  $0,94\% \leq C_{Ni} \leq 1,88\%$  (рис. 7).

Т а б л и ц а 2

Значения коэффициента  $\eta$  для материалов КР ВВЭР-1000

Материал	$\eta$	
	“ОС КИ”	“ИП Прометей”
ОМ	1,0	0,95
МШ ( $C_{Ni} \leq 1,3\%$ )	1,0	0,82
МШ ( $C_{Ni} > 1,5\%$ )	1,0	0,88
МШ ( $0,94\% \leq C_{Ni} \leq 1,88\%$ )	1,0	0,85

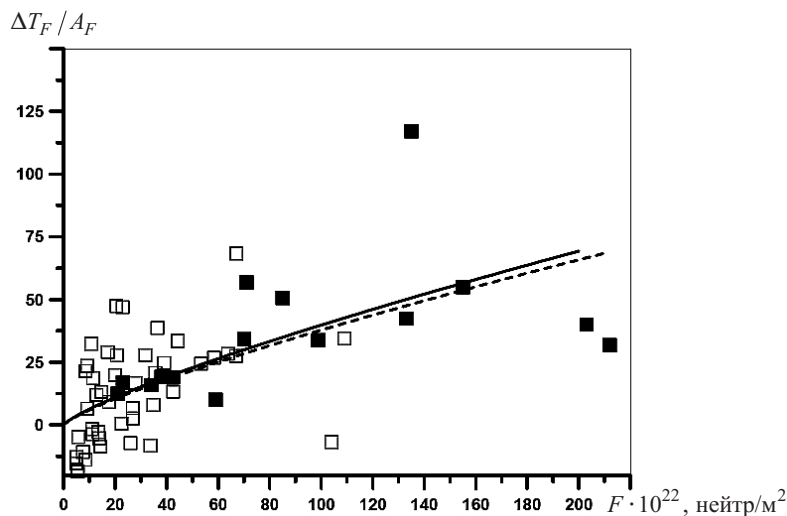


Рис. 6. Нормированная дозовая зависимость для основного металла КР ВВЭР-1000: □ – данные “ОС КИ” (низкий уровень флюкса  $\varphi \approx 10^{15}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ )); ■ – данные “ИП Прометей” (высокий уровень флюкса  $\varphi \approx 10^{17}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ )). (Сплошная и штриховая линии – (13) соответственно для низкого ( $\eta = 1,0$ ) и высокого ( $\eta = 0,95$ ) уровней флюкса нейтронов.)

Для основного металла флюкс нейтронов практически не влияет на изменение  $\Delta T_F$ . По-видимому, различная чувствительность к флюксу МШ и ОМ связана с разным суммарным содержанием никеля и марганца ( $C_{Ni} + C_{Mn}$ ). Так, для ОМ суммарное содержание  $C_{Ni} + C_{Mn} = 1,6\%$ , для МШ с низким содержанием никеля ( $C_{Ni} \leq 1,3\%$ )  $C_{Ni} + C_{Mn} = 1,9\%$ , для МШ с высоким содержанием никеля ( $C_{Ni} > 1,5\%$ )  $C_{Ni} + C_{Mn} = 2,6\%$ .

Рассмотрим известные из литературных источников данные механических испытаний и микроструктурных исследований по оценке влияния флюкса нейтронов. Прежде всего отметим обнаруженное влияние флюкса нейтронов на  $\Delta T_F$  у стали 15Х2МФА с повышенным содержанием меди ( $C_{Cu} \geq 0,13\%$ ) [4]. Медь является элементом, малорастворимым в  $Fe_\alpha$ , и, как следствие, склонным к образованию преципитатов. Поэтому влияние флюкса нейтронов на  $\Delta T_F$  говорит о чувствительности механизма “В” к эффекту флюкса.

Поскольку механизм “В” является упрочняющим, судить о влиянии флюкса нейтронов при его реализации можно не только по изменению  $\Delta T_F$ , но и  $\Delta \sigma_{0,2}$ .

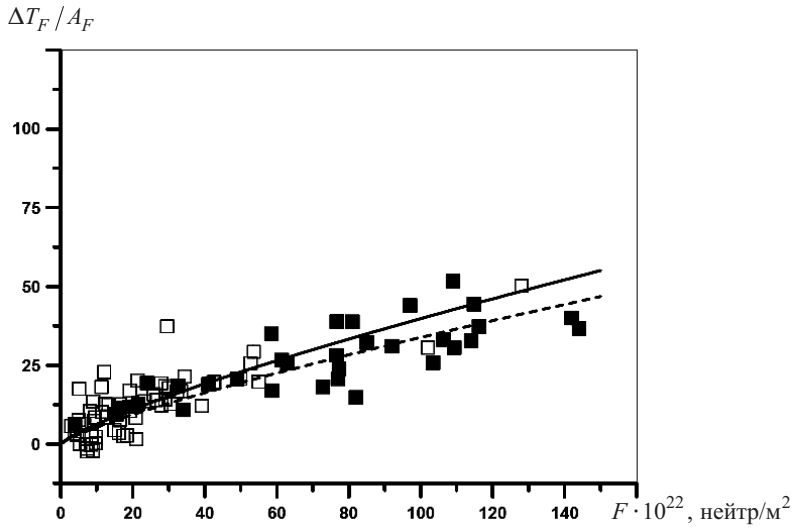


Рис. 7. Нормированная дозовая зависимость для металла сварного шва КР ВВЭР-1000 с содержанием  $0,94\% \leq C_{Ni} \leq 1,88\%$ :  $\square$  – данные “ОС КИ” (низкий уровень флюкса  $\varphi \approx 10^{15}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ ));  $\blacksquare$  – данные “ИП Прометей” (высокий уровень флюкса  $\varphi \approx 10^{17}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ )). (Сплошная и штриховая линии – зависимость (13) для низкого ( $\eta = 1,01$ ) и высокого ( $\eta = 0,85$ ) уровней флюкса нейтронов.)

В работах [7, 8] представлена обширная база данных IVAR по корпусным реакторным сталям различного химического состава. Элементы, образующие преципитаты, варьируются в сталях в следующих диапазонах:  $0 \leq C_{Ni} \leq 1,71\%$ ;  $0,01\% \leq C_{Mn} \leq 1,70\%$ ;  $0,01\% \leq C_{Si} \leq 0,63\%$ ;  $0 \leq C_{Cu} \leq 0,86\%$ , содержание фосфора варьируется в диапазоне  $0,002\% \leq C_P \leq 0,05\%$ . База данных включает более 60 различных комбинаций Ni, Mn, Si, P и Cu в составе плавок, поковок и металла швов. Облучение в каждом случае проводилось тремя уровнями флюкса нейтронов с  $E > 1$  МэВ ( $\sim 9 \cdot 10^{14}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ ) – низкий флюкс,  $\sim 3 \cdot 10^{15}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ ) – средний флюкс и  $\sim 9 \cdot 10^{15}$  нейтр/( $m^2 \cdot c$ ) – высокий флюкс) при температуре  $290^\circ C$ . В работах [7, 8] в качестве меры влияния флюкса нейтронов используется величина  $\Delta\sigma_{0,2}$ . Использование  $\Delta\sigma_{0,2}$  в качестве индексации флюкса нейтронов в данном случае достаточно обосновано, так как рассматривается упрочняющий механизм радиационного охрупчивания (механизм “В”). Показана хорошая корреляция между  $\Delta\sigma_{0,2}$  и  $\Delta T_F$ . Связь  $\Delta\sigma_{0,2}$  с  $\Delta T_F$  определяется соотношением

$$\Delta T_F = k \Delta\sigma_{0,2}, \quad (24)$$

где  $k = 0,6$   $^\circ C/MPa$  для ОМ и  $0,69$   $^\circ C/MPa$  для МШ [7, 8].

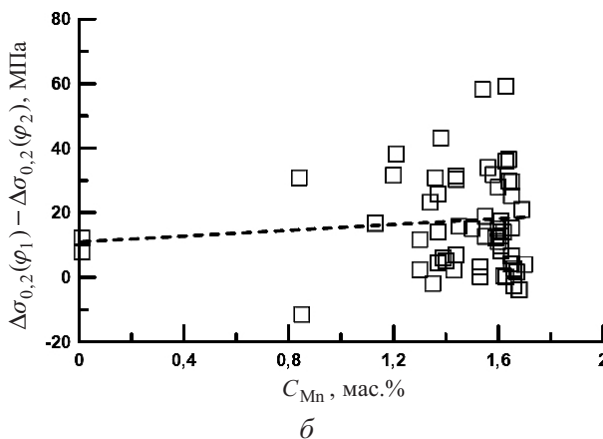
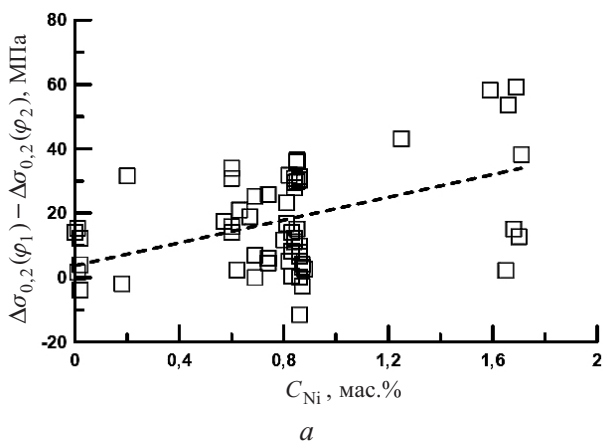
Анализ имеющейся базы данных показывает следующее. Во всех рассмотренных группах экспериментальные данные по  $\Delta\sigma_{0,2}$ , полученные при облучении низким уровнем флюкса ( $\varphi_1$ ), располагаются, по крайней мере, не ниже, чем полученные при высоком уровне флюкса ( $\varphi_2$ ), при облучении средним уровнем флюкса они располагаются между данными, полученными



при облучении низким и высоким уровнями флюкса [7, 8]. В работах [7, 8] эффект флюкса определяется как разность приращений предела текучести при низком и высоком уровнях флюкса.

Обработка экспериментальных данных работ [7, 8] показывает, что повышение содержания таких элементов, как Ni и Si в корпусных материалах, приводит к увеличению разности между приращениями предела текучести, полученными при облучении низким и высоким уровнем флюкса (рис. 8,а,в). Этот факт, несомненно, свидетельствует о влиянии указанных элементов на эффект флюкса. Согласно данным рис. 8,б повышение содержания марганца в рассматриваемых материалах приводит к меньшему увеличению разности между приращениями предела текучести. Следует отметить, что судить о влиянии  $C_{Mn}$  на рост эффекта флюкса по данным рис. 8,б затруднительно, так как основная база данных соответствует варьированию  $C_{Mn}$  в очень узком диапазоне. Рис. 8,г хорошо иллюстрирует отсутствие влияния на эффект флюкса такого элемента, как фосфор.

Что касается влияния кремния на эффект флюкса, то на первый взгляд можно сказать, что кремний, как и фосфор, не оказывает влияния. Вероятно, его влияние необходимо учитывать в совокупности с марганцем ( $C_{Mn} - kC_{Si}$ ), так как именно в таком виде (см. разд. 2.1) влияние этого элемента учитывается в коэффициенте радиационного охрупчивания [17, 18, 21].



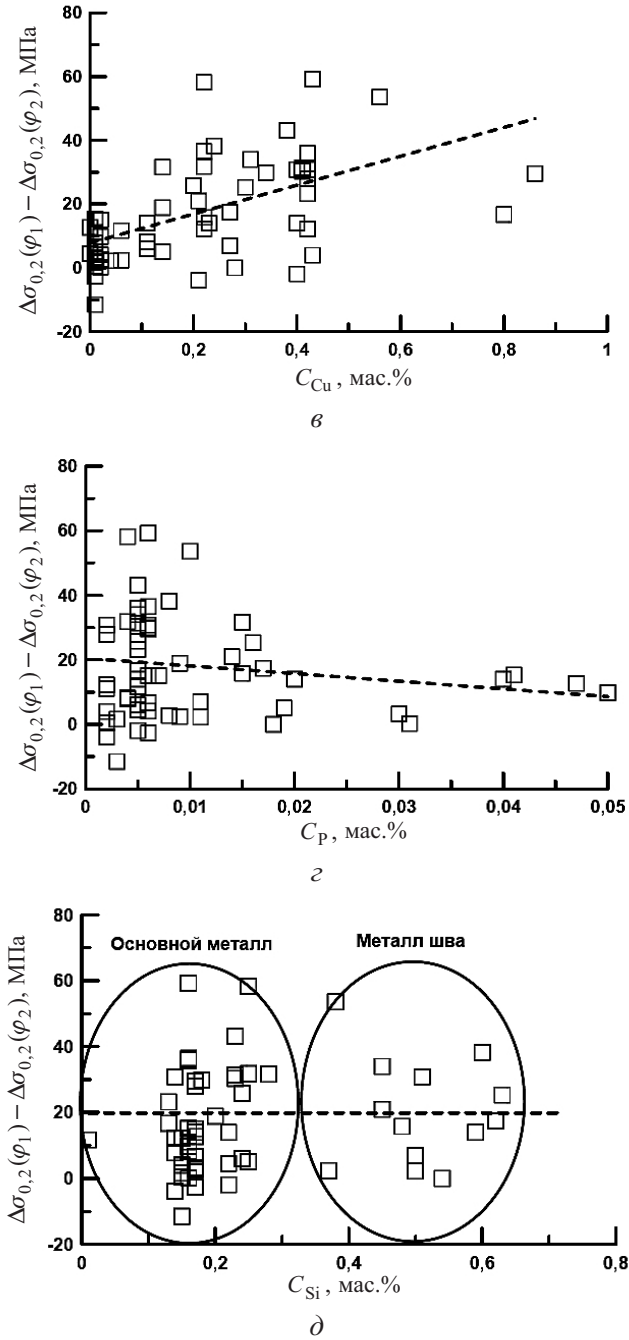


Рис. 8. Зависимость разности приращений предела текучести при низком и высоком уровне флекса от содержания химических элементов – Ni (а), Mn (б), Cu (в), P (г), Si (д): точки – экспериментальные данные работ [7, 8]; штриховые линии – аппроксимация экспериментальных данных.

В работе проведено исследование влияния таких элементов, как Ni и Mn, на радиационное упрочнение и охрупчивание материалов КР ВВЭР-1000 и материалов из базы данных IVAR [7, 8]. На рис. 9 приведена зависимость

разности приращений предела текучести при низком и высоком уровне флакса от суммарного содержания марганца и никеля по экспериментальным данным из работ [7, 8]. Примем, что эффект флакса начинает оказывать влияние на упрочнение, если разность приращений предела текучести будет выше погрешности ее определения – 10 МПа. Из рис. 9 видно, что эффект флакса начинает проявляться, по крайней мере, при  $C_{Ni} + C_{Mn} \geq 1,79\%$ , что соответствует уровню 10 МПа. При содержании  $C_{Ni} + C_{Mn} \approx 1,6\%$ , характерном для основного металла, величина разности приращений предела текучести равна 8,1 МПа, что меньше погрешности ее определения.

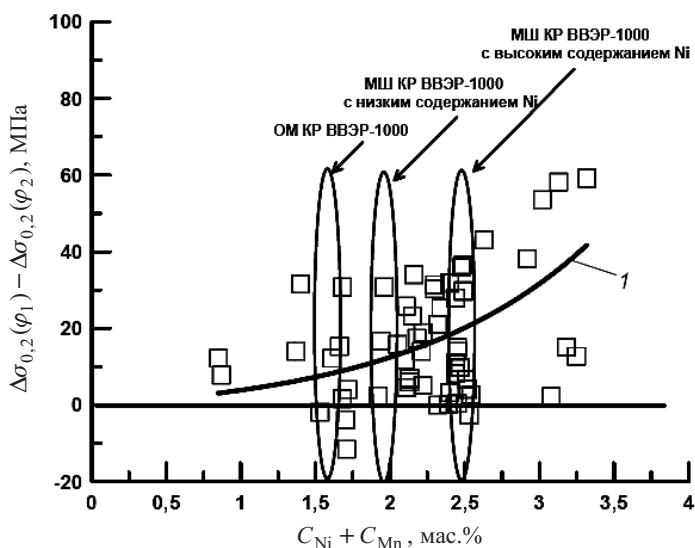


Рис. 9. Зависимость разности приращений предела текучести при низком и высоком уровне флакса от  $C_{Ni} + C_{Mn}$ : точки – экспериментальные данные; 1 – аппроксимация экспериментальных данных зависимостью  $\Delta\sigma_{0,2}(\varphi_1) - \Delta\sigma_{0,2}(\varphi_2) = 3,128[\exp(0,802(C_{Ni} + C_{Mn})) - 1]$ .

При  $C_{Ni} + C_{Mn} = 1,79\%$  наблюдается влияние эффекта флакса на  $\Delta\sigma_{0,2}$  и, следовательно, на  $\Delta T_F$ . При  $C_{Ni} + C_{Mn} = 2,6\%$  величина разности приращений предела текучести равна 22,1 МПа, что говорит о достаточно выраженном влиянии эффекта флакса. Таким образом, полученные результаты исследования влияния эффекта флакса на радиационное охрупчивание материалов КР ВВЭР-1000 соответствуют тенденциям, следующим из экспериментальных данных [7, 8].

Рассмотрим влияние флакса нейтронов с позиции изменения микроструктуры. В работе [38] представлены данные по облучению стали SA533В разным уровнем флакса нейтронов. Химический состав стали (%) следующий: 0,19 С; 0,26 Si; 1,38 Mn; 0,007 P; 0,008 S; 0,62 Ni; 0,48 Mo; 0,09 Cu.

В табл. 3 приведены данные о размере и составе преципитатов, которые образуются в стали под воздействием нейтронного облучения при двух значениях флакса.

Оценим вклад в упрочнение материала механизма образования преципитатов. Напомним, что существенный вклад в упрочнение вносит также образование дислокационных петель. Величина упрочнения материала за счет

Т а б л и ц а 3

Результаты исследований стали SA533B при двух значениях флюкса

Место облучения	$F \cdot 10^{22}$ , нейтр/ м <sup>2</sup>	$\varphi \cdot 10^{15}$ , нейтр/ м <sup>2</sup> · с	$\rho_{\text{вкл}} \times 10^{23}$ , м <sup>-3</sup>	$d_{\text{вкл}}$ , нм	$V_{\text{вкл}} \times 10^{-3}$ , мм <sup>3</sup>	Химический состав кластеров, ат.%				
						Cu	Ni	Mn	Si	Fe
Промышленный реактор	31	1	1,8	2,8	2,4	4,1	11,4	7,5	5,3	61,3
	63	1	2,7	3,1	4,4	3,0	11,4	6,8	7,8	61,3
Халденский реактор (Норвегия)	32	50	2,0	2,2	1,3	3,2	10,5	6,7	7,2	60,4
	59	50	3,2	2,6	3,2	3,3	10,9	7,3	8,6	57,9
	120	50	5,1	2,9	6,6	2,3	10,4	6,5	8,9	61,4

Примечание.  $\rho_{\text{вкл}}$ ,  $d_{\text{вкл}}$ ,  $V_{\text{вкл}}$  – соответственно плотность включений, их диаметр и объем.

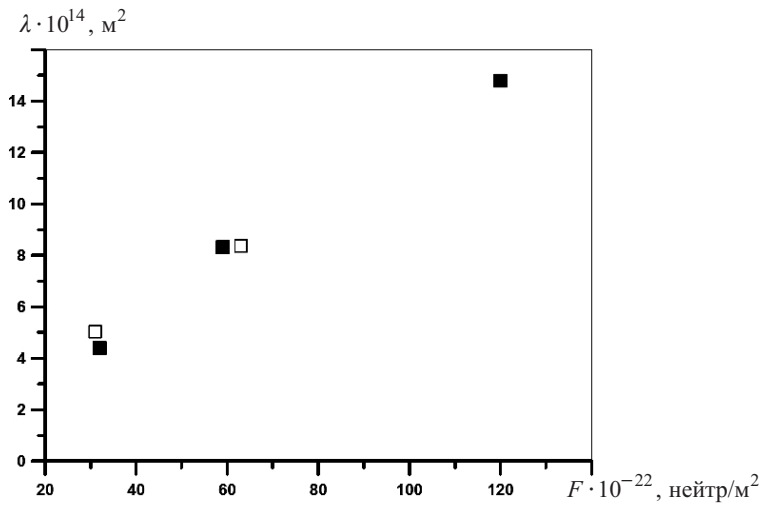


Рис. 10. Зависимость параметра  $\lambda$  от флюенса нейтронов при двух значениях флюкса:  $\square$  –  $\varphi \approx 1 \cdot 10^{15}$  нейтр/(м<sup>2</sup> · с);  $\blacksquare$  –  $\varphi \approx 50 \cdot 10^{15}$  нейтр/(м<sup>2</sup> · с).

преципитатов  $\Delta\sigma_{0,2}^{\text{прец}}$  может быть оценена на основании напряжений Орована. Примем, что  $\Delta\sigma_{0,2}^{\text{прец}} \approx \tau_{\text{Orovan}}$ . Как известно, напряжение Орована [39] рассчитывается по формуле

$$\tau_{\text{Orovan}} = \alpha \frac{Gb}{\lambda}, \tag{25}$$

где  $\alpha$  – константа, зависящая от типа барьера;  $G$  – модуль сдвига;  $b$  – вектор Бюргерса;  $\lambda$  – среднее расстояние между барьерами. Параметр  $\lambda$  может быть определен по формуле

$$\lambda = \left( \sum_i \rho_i d_i \right)^{-1/2}, \tag{26}$$

где  $\rho_i$  – концентрация  $i$ -тых кластеров размером  $d_i$ .

Для решения вопроса о наличии эффекта флакса достаточно получить различие в параметре  $\lambda$ . Зависимость  $\lambda$  от флюенса нейтронов при двух значениях флакса представлена на рис. 10.

Как видно из рис. 10, влияния флакса, связанного с преципитатами, не наблюдается. Такой результат согласуется с данными, приведенными на рис. 9. В нашем случае суммарное содержание никеля и марганца  $C_{Ni} + C_{Mn} = 2,0\%$ , и согласно данным рис. 9 такое содержание элементов приводит к незначительному эффекту флакса.

Анализ данных, представленных в литературных источниках, и оригинальные экспериментальные данные показывают, что флакс нейтронов начинает оказывать влияние на радиационное охрупчивание металла при выполнении двух условий:

химический состав металла таков, что при нейтронном облучении из твердого раствора выделяются элементы, образующие преципитаты;

механизм “В” доминирует в РО металла по сравнению с механизмами “А” и “С”.

## Выводы

1. Выполнено исследование по оценке влияния эффекта флакса на охрупчивание материалов КР ВВЭР посредством сопоставления результатов испытаний ОС и образцов, облученных при высоком уровне флакса нейтронов в рамках исследовательских программ.

2. Проанализирован эффект флакса нейтронов при доминировании различных механизмов охрупчивания материалов КР.

3. Показано, что при контроле радиационного охрупчивания механизмами “А” (упрочняющий механизм за счет образования дислокационных петель) и “С” (неупрочняющий, сегрегационный механизм) эффект флакса пренебрежительно мал. При доминировании упрочняющего механизма вследствие образования барьеров в виде преципитатов или кластеров (механизм “В”) флакс может влиять на радиационное охрупчивание материалов КР, причем это влияние отрицательное: с увеличением флакса  $\Delta T_F$  уменьшается. Основными элементами, образующими преципитаты, являются Ni, Mn и Cu. На основании экспериментальных данных для материалов КР типа ВВЭР и PWR (стали A508, SA533B), а также для модельных сплавов установлено, что эффект флакса начинает проявляться при суммарном содержании никеля и марганца  $C_{Ni} + C_{Mn} \approx (1,8...1,9)\%$ . Такой вывод соответствует материалам с малым содержанием меди ( $C_{Cu} < 0,12\%$ ). Медь имеет меньшую растворимость в  $\alpha$ -железе, чем никель и марганец, но оказывает более сильное влияние на радиационное охрупчивание материала. Поэтому эффект флакса начинает проявляться даже при относительно небольшом ее содержании –  $C_{Cu} \approx (0,12...0,14)\%$ . Данный вывод следует из работ [4, 7, 8].

4. Установлено, что для материалов КР ВВЭР-1000 с  $C_{Ni} + C_{Mn} \geq 1,9\%$  увеличение флакса нейтронов в 100 раз по сравнению с флаксом, характерным для облучения КР, приводит к уменьшению  $\Delta T_F$  менее чем на 20%.

5. Для материалов КР ВВЭР-1000 получены зависимости, позволяющие прогнозировать изменения коэффициента радиационного охрупчивания  $A_F$  не

только от химического состава (что было сделано в работах [17, 18]), но и от температуры облучения.

## Резюме

Проанализовано эффект флакса нейтронів для матеріалів корпусів реакторів ВВЕР у випадках, коли домінують різні механізми окрихчування. Використано дані щодо зсуву критичної температури крихкості, отримані в рамках програм зразків-свідків і дослідних програм. Визначено механізми окрихчування матеріалів, згідно з якими ефект флакса практично відсутній і за яких він значущий. У випадку, коли домінує механізм сегрегації фосфору, теоретично обґрунтовано відсутність ефекту флакса на основі теорії радіаційно-прискореної дифузії.

1. *Николаев В. А., Рядков Л. Н.* Роль спектра и плотности нейтронного потока в радиационном охрупчивании стали марки 15Х2МФА и металла ее сварных швов // Радиационное материаловедение и конструкционная прочность реакторных материалов. – СПб.: ФГУП ЦНИИ КМ “Прометей”, 2002. – С. 178 – 199.
2. *Stoller R. E.* The effect of neutron flux on radiation-induced embrittlement in reactor pressure vessel steels // J. ASTM Int. – 2004. – 1, No. 4. – P. 326 – 337. – Paper ID JAI 11355.
3. *Soneda N., Dohi K., Nishida K., et al.* Flux effect on neutron irradiation embrittlement of reactor pressure vessel steels irradiated to high fluences // Int. Symp. FONTEVRAUD 7 (Sept. 26–30, 2010, Avignon). – No. O07-A080-T01.
4. *Chernobaeva A. A., Kryukov A. M., Amaev A. D., et al.* The role of flux effect on radiation embrittlement of WWER-440 reactor pressure vessel materials // Proc. of the IAEA Technical Meeting (Gus-Khrustalny, Russia). – М.: Kurchatov Institute, 2008. – P. 38 – 53.
5. *Embrittlement and Mechanistic Interpretation of Reactor Pressure Vessel and Internal Materials.* – EUR 21835 EN. – 2005. – P. 38 – 53.
6. *Erak D., Gurovich B., Shtrombakh Ya., and Zhurko D.* Degradation and recovery of mechanical properties of VVER-1000 pressure vessel materials // Int. Symp. FONTEVRAUD 7 (Sept. 26–30, 2010, Avignon). – No. O12-A096-T01.
7. *Eason E. D., Odette G. R., Nanstad R. K., and Yamamoto T.* A Physically Based Correlation of Irradiation-Induced Transition Temperature Shifts for RPV Steels. – ORNL/TM-2006/530, Nov. 2007.
8. *Kirk M.* Assessment of flux effect exhibited by IVAR database // Proc. of the IAEA Technical Meeting on Radiation Embrittlement and Life Management of Reactor Pressure Vessels (Oct. 18–22, 2010, Znojmo, Czech Republic).
9. *Williams T.* On the differences and commonalities in Western RPV steel embrittlement data after MTR or NPP irradiation. – PAMELA Workshop, Mol. – Sept. 2011.

10. *Brumovsky M., Valo M., Gillemot F., et al.* Guidelines for Prediction of Irradiation Embrittlement of Operating WWER-440 Reactor Pressure Vessels. – IAEA-TECDOC-1442, 2005. – 69 p.
11. *Project TAREG2.01/00.* Validation of Neutron Embrittlement for VVER 1000 & 440/213 RPVs, with Emphasis on Integrity Assessment. – Final Report TAREG2.01-00/SC-31.0260/DIA/E/TR/06 04 001–01.
12. *Платонов П. А., Штромбах Я. И., Николаев Ю. А.* Анализ состояния металла корпусов действующих реакторов // *Вопр. атом. науки и техники. Сер.: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение.* – 2002. – **82**, № 6. – С. 3 – 12.
13. *Nikolaev Yu. A.* Radiation embrittlement of Cr–Ni–Mo and Cr–Mo RPV steels // *J. ASTM Int.* – 2007. – **4**, No. 8, Paper ID JAI 100695.
14. *Марголин Б. З., Швецова В. А., Гуленко А. Г., Несетерова Е. В.* Локальный критерий хрупкого разрушения и радиационное охрупчивание корпусных реакторных сталей // *Пробл. прочности.* – 2010. – № 5. – С. 31 – 61.
15. *Margolin B. Z., Shvetsova V. A., Gulenko A. G., and Kostylev V. I.* Prometey local approach to brittle fracture: development and application // *Eng. Fract. Mech.* – 2008. – **75**. – P. 3483 – 3498.
16. *Баландин Ю. Ф., Горынин И. В., Звездин Ю. И., Марков В. Г.* Конструкционные материалы АЭС. – М.: Энергоатомиздат, 1984. – 280 с.
17. *Марголин Б. З., Николаев В. А., Юрченко Е. В. и др.* Новый подход к описанию охрупчивания материалов корпусов реакторов ВВЭР-1000 в процессе эксплуатации // *Пробл. прочности.* – 2010. – № 1. – С. 7 – 26.
18. *Margolin B. Z., Nikolayev V. A., Yurchenko E. V., et al.* Analysis of embrittlement of WWER-1000 RPV materials // *Int. J. Press. Vess. Piping.* – 2012. – **89**. – P. 178 – 186.
19. *Марголин Б. З., Юрченко Е. В., Морозов А. М., Пирогова Н. Е.* Анализ эффекта флакса нейтронов применительно к радиационному охрупчиванию материалов корпусов реакторов ВВЭР // *Вопр. материаловедения.* – 2012. – № 2 (70). – С. 177 – 196.
20. *Карзов Г. П., Николаев В. А., Юрченко Е. В.* Дозовые зависимости радиационного охрупчивания российских материалов для корпусов энергетических реакторов ВВЭР-440 // *Там же.* – 2009. – № 4 (60). – С. 124 – 135.
21. *Ahlstrand R., Margolin B., Akbashev I., et al.* TAREG 2.01/00 project. “Validation of neutron embrittlement for VVER 1000 and 440/213 RPVs, with emphasis on integrity assessment” // *Progress Nucl. Energy.* – 2012. – **58**. – P. 52 – 57.
22. *Владимиров В. И.* Физическая природа разрушения материалов. – М.: Металлургия, 1984. – 280 с.
23. *Nichols R. W. and Harries D. R.* Brittle fracture and irradiation effects in ferritic pressure vessel steels // *Symp. on Radia Effects on Metals and Neutron Dosimetry.* – ASTM STP 341, 1963. – P. 162 – 198.

24. *Miller M. K., Russell K. F., Kocik J., and Keilova E.* Embrittlement of low copper VVER 440 surveillance samples neutron-irradiated to high fluences // *J. Nucl. Mater.* – 2000. – **282**. – P. 83 – 88.
25. *Alekseenko N. N., Amaev A. D., Gorynin I. V., and Nikolaev V. A.* Radiation Damage of Nuclear Power Plant Pressure Vessel Steels. – La Grange Park, 1997. – 282 p.
26. *Утевский Л. М.* Отпуская хрупкость стали. – М.: Metallurgizdat, 1961. – 192 с.
27. *Тихончев М. Ю., Светухин В. В.* Расчетное определение пороговых энергий смещения и исследование особенностей развития каскадов атомных смещений вблизи протяженной границы раздела фаз циркония и ниобия: молекулярно-динамическое моделирование // *Вопр. материаловедения.* – 2011. – № 4 (64). – С. 140 – 152.
28. *Gurovich B. A., Kuleshova E. A., Nikolaev Yu. A., and Shtrombakh Ya. I.* Assessment of relative contributions from different mechanisms to radiation embrittlement of reactor pressure vessel steels // *J. Nucl. Mater.* – 2007. – **246**. – P. 91 – 120.
29. *Okamoto P. R. and Rehn L. E.* Radiation-induced segregation on binary and ternary alloys // *Ibid.* – 1979. – **83** – No. 1. – P. 2 – 23.
30. *McLean D.* Grain Boundaries in Metals. – London: Oxford University Press, 1957.
31. *McMahon C. J. and Marchut L.* Solute segregation in iron-based alloys // *J. Vac. Sci. Technol.* – 1978. – **15**. – P. 450 – 457.
32. *Утевский Л. М., Гликман Е. Э., Карк Г. С.* Обратимая отпускная хрупкость стали и сплавов железа. – М.: Metallurgiya, 1987. – 222 с.
33. *Карк Г. С.* О роли радиационно стимулированной диффузии примесей в охрупчивании перлитной стали при нейтронном облучении // *Металловедение и термическая обработка сталей для оборудования энергоустановок: Тр. ЦНИИТМАШ № 177.* – М., 1983. – С. 81 – 92.
34. *Печенкин В. А.* О сегрегации на границах зерен при облучении многокомпонентных сплавов. – Обнинск, 1999. – 46 с. – (Препр. ФЭИ-2788).
35. *Pechenkin V. A., Stepanov I. A., and Konobeev Yu. V.* Modeling of phosphorus accumulation on grain boundaries in iron alloys under irradiation // *Proc. 20th Int. Symp. on Effects of Radiation on Materials.* – ASTM STP 1405. – 2001. – P. 174 – 187.
36. *Druce S. G., English C. A., Foreman A. J. E., et al.* The modeling of irradiation-enhanced phosphorus segregation in neutron irradiated reactor pressure vessel submerged-arc welds // *ASTM STP 1270.* – 1996. – P. 119 – 137.
37. *Шалаев А. М.* Радиационно стимулированная диффузия в металлах. – М.: Атомиздат, 1972. – 148 с.
38. *Kenji D., Kenji N., Akiyoshi N., et al.* Effect of additional irradiation at different fluxes on RPV embrittlement // *Proc. of the ASME 2009: Pressure Vessels and Piping Division Conference, PVP2009 (July 26–30, 2009, Prague).*
39. *Ahsby M. F.* About the Orowan stress / A. Argon (Ed.), *Physics of Strength and Plasticity.* – Cambridge: MIT Press, 1970. – P. 404 – 412.

Поступила 11. 06. 2013