

КАЛЬЧЕНКО

Олександр Сергійович –
кандидат фізико-математичних
наук, науковий співробітник
Інституту фізики твердого тіла,
матеріалознавства та технологій
ННЦ «Харківський
фізико-технічний інститут»
НАН України,
kalchenko@kipt.kharkov.ua

УДК 620.187:621.039.531

РАДІАЦІЙНЕ РОЗПУХАННЯ МАТЕРІАЛІВ ВНУТРІШНЬОКОРПУСНИХ ПРИСТРОЇВ РЕАКТОРІВ ВВЕР

За матеріалами наукового повідомлення
на засіданні Президії НАН України
2 жовтня 2013 року

Методом експресного опромінення на прискорювачі отримано систематичні дані з розпухання сталі 08X18H10T – матеріалу внутрішньокорпусних пристроїв реакторів ВВЕР за різних умов опромінення (دوزи, температури, швидкості створення зміщень, концентрації гелію й водню). Встановлено особливості впливу гелію і водню на процеси розпухання за зміни температури опромінення. Побудовано функцію, яка описує розпухання досліджуваної сталі в широкому інтервалі доз, температур і швидкостей створення зміщень, характерних як для реакторних умов, так і для опромінь на іонних прискорювачах. Виконано прогноз розпухання сталі 08X18H10T по перетину вигородки реактора ВВЕР-1000 у процесі тривалі експлуатації (30–60 років). Досліджено розпухання перспективної сталі 08X18H10T ДЗО (дисперсно-зміцненої оксидами), опроміненої на прискорювачі, й виявлено, що її стійкість до радіаційного розпухання вища, ніж сталі 08X18H10T.

Ключові слова: реактори ВВЕР, сталь 08X18H10T, дисперсно-зміцнена оксидами сталь, опромінення, радіаційне розпухання, гелій та водень.

Вступ

В оновленій Енергетичній стратегії України на період до 2030 р. передбачено подовження експлуатації діючих атомних енергоблоків загальною потужністю 11 ГВт на 30 років понад проектні терміни, а також збереження до 2030 р. частки генерованої на АЕС електроенергії на рівні 50 % від загального обсягу вітчизняного виробництва. Однак досягнення встановленої мети обмежується радіаційною стійкістю конструкційних матеріалів, оскільки в них під час роботи реакторів на теплових нейтронах спостерігається досить значне накопичення флюенсу

нейтронів та нагрівання внаслідок поглинання гамма-квантів і нейтронів. Взаємодія нейтронів з атомами матеріалів внутрішньокорпусних пристроїв (ВКП) крім утворення радіаційних дефектів призводить до появи чужорідних атомів з ядерних реакцій трансмутації. Особливе значення ядерних реакцій трансмутації полягає в генеруванні газових трансмутантів — гелію і водню, концентрації яких, за 30 років експлуатації вигородки реактора на теплових нейтронах, можуть досягати 1000 та 2000 аррм відповідно [1–3].

У конструюванні реакторів на теплових нейтронах як матеріал для ВКП зазвичай використовували аустенітну нержавіючу сталь 08X18H10T. Такий вибір був зумовлений лише технологічними міркуваннями, адже радіаційні властивості цієї сталі на той час практично не враховувалися. З розвитком радіаційного матеріалознавства впродовж майже півстолітнього періоду було накопичено значний експериментальний матеріал, отримано радіаційні характеристики аустенітних нержавіючих сталей, зокрема сталі 08X18H10T, відкрито нові радіаційні явища, серед яких одним із найважливіших виявилось явище вакансійного розпухання.

Радіаційне розпухання спричинює прогресуючу формозміну елементів конструкцій реакторів, що може призвести до неможливості їх нормального функціонування. На сьогодні вже встановлено й аналітично описано основні закономірності залежності розпухання від дози (флюенсу нейтронів), температури опромінення, хімічного складу та вихідного структурного стану сталей. Проте для узагальнення наявних результатів нині не вистачає даних систематичних досліджень впливу на розпухання окремих факторів, таких як швидкість створення зміщень, накопичення гелію та водню. Водночас нестача знань про поведінку матеріалів у процесі тривалої роботи реактора (вплив фактора часу) за відповідних температур і нейтронно-фізичних параметрів ускладнює обґрунтування надійності експлуатації ВКП.

У зв'язку з цим актуальними напрямками досліджень є систематичне вивчення, аналіз та

узагальнення закономірностей впливу різних експлуатаційних факторів на розпухання і мікроструктуру сталей аустенітного класу, прогнозування роботоздатності елементів конструкцій реакторів за високих пошкоджувальних доз, а також розроблення нових конструкційних матеріалів для реакторів.

Вплив різних експлуатаційних факторів на розпухання сталей

У дослідженнях використовували зразки аустенітної хромонікелевої нержавіючої сталі 08X18H10T, основного матеріалу ВКП реакторів ВВЕР, та перспективної сталі 08X18H10T ДЗО, дисперсно-зміцненої оксидами ітрію. Докладніше про матеріали й методику експериментальних досліджень див. у роботі [4].

Вплив гелію і водню в сталі 08X18H10T. Дослідження розпухання сталі 08X18H10T проводили за умов, характерних для закінчення ресурсу ВКП реакторів ВВЕР, тобто за дози 50 зна в інтервалі температур 450–650 °С, а також за спільного опромінення іонами хрому, гелію й/або водню до концентрацій 2000 і 1000 аррм відповідно (рис. 1). Отримані результати свідчать, що за подвійного (Cr+H, Cr+He) і потрійного (Cr+H+He) опромінення утворення пор спостерігається вже за 450 °С, що нехарактерно для опромінення тільки важкими іонами хрому. Величина розпухання за

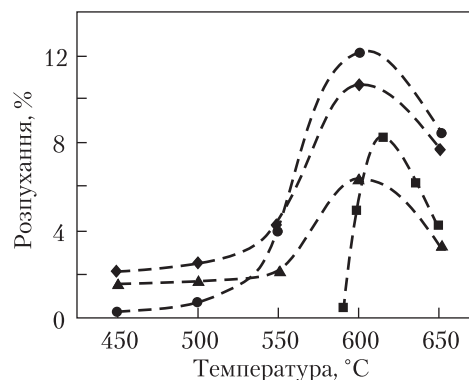


Рис. 1. Температурні залежності розпухання сталі 08X18H10T після опромінення ($D = 50$ зна; H^+ — 2000 аррм і He^+ — 1000 аррм): ■ — Cr^{3+} ; ● — $Cr^{3+} + H^+$; ▲ — $Cr^{3+} + He^+$; ◆ — $Cr^{3+} + H^+ + He^+$

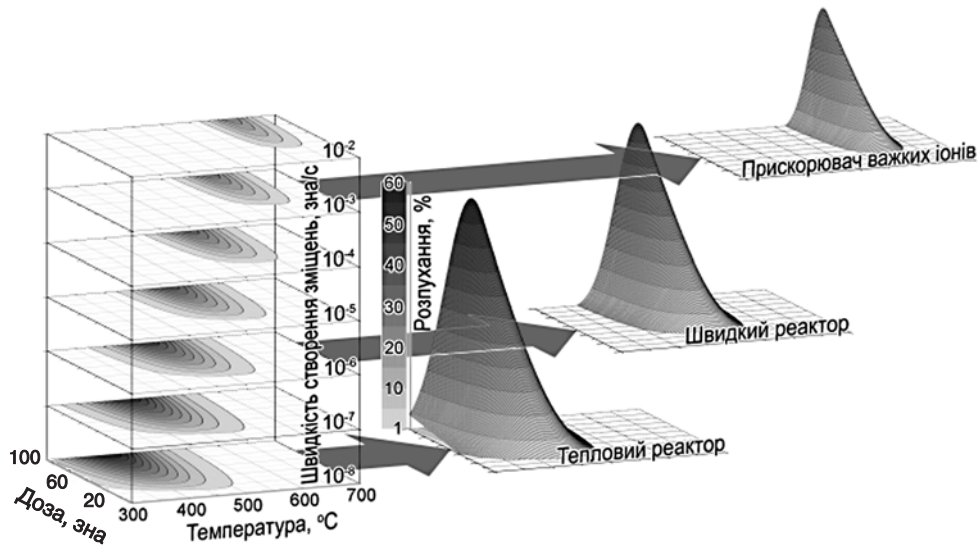


Рис. 2. Температурно-дозні карти розпухання сталі 08X18N10T для різних швидкостей створення зміщень, розраховані за допомогою емпіричної функції

T_{\max} у разі опромінення Cr+N зростає в 1,5 раза порівняно з опроміненням лише іонами Cr, але знижується на 33 % в разі опромінення іонами Cr+Ne. Одночасне опромінення потрійним пучком Cr+Ne+N не спричинює взаємного впливу на розпухання, як це спостерігається для феритних сталей [5], – біля максимуму розпухання мало відрізняється від випадку подвійного опромінення іонами хрому та водню, але за низьких температур ($\sim 450^\circ\text{C}$) воно збільшується майже на порядок.

Отже, за одночасного опромінення іонами хрому, гелію й/або водню виявлено зміщення температури пороутворення в бік низьких температур, збільшення концентрації пор і зменшення їхнього розміру, що особливо помітно для випадку гелію. Можна дійти висновку, що газові домішки сприяють більш ранньому зародженню пор за температур, нижчих від максимуму розпухання, тоді як у самому максимумі цей ефект незначний. Детальніші результати досліджень наведено у [6].

Вплив швидкості створення зміщень та аналітичний опис розпухання сталі 08X18N10T. Дослідження впливу швидкості створення зміщень ($k = 10^{-3}$ та 10^{-2} зна/с) на параметри радіаційної пористості сталі

08X18N10T, опроміненої в широкому інтервалі доз і температур, показало, що для обох швидкостей спостерігається однакова тенденція у поведінці концентрації та розміру пор. Встановлено, що зі збільшенням швидкості створення зміщень температурна зона пороутворення звужується, а максимум розпухання зміщується в бік вищих температур опромінення. В максимумі розпухання збільшення інтенсивності опромінення знижує швидкість розпухання на стаціонарній стадії і збільшує інкубаційний період; підвищення температури опромінення скорочує інкубаційний період. Як наслідок, досліджувана сталь, опромінена за нижчих швидкостей створення зміщень, розпухає сильніше.

На основі даних, отриманих на прискорювачі, та літературних реакторних даних ($k = 10^{-6}$ та 10^{-7} зна/с) було сформульовано емпіричну функцію, що описує розпухання з урахуванням дози, температури та швидкості створення зміщень (рис. 2). Функцію було екстрапольовано на нижчі швидкості створення зміщень ($k = 10^{-8}$ та 10^{-9} зна/с), які характерні для реакторів на теплових нейтронах. З метою підтвердження обґрунтованості такої екстраполяції одержані результати з розпухання було порів-

няно з наявними в літературі емпіричними функціями і встановлено, що запропонована модель загалом узгоджується з ними і найбільш повно й оптимально описує поведження розпухання [7, 8].

Прогнозування радіаційного розпухання вигородки реактора ВВЕР-1000. За допомогою розробленої емпіричної функції було розраховано розпухання по перерізу вигородки реактора ВВЕР-1000 у процесі тривалої експлуатації (30–60 років) з використанням нейтронно-фізичних розрахунків температурного та дозного поля в центральному перерізі вигородки реактора, виконаних у ОКБ «Гідропрес» спільно з НДІ атомних реакторів [9].

Аналіз отриманих результатів показав, що зі збільшенням часу експлуатації внутрішній бік вигородки, наближений до активної зони, розпухає нерівномірно від поверхні вглиб матеріалу (рис. 3). Приповерхневий шар внутрішнього боку вигородки мало розпухає навіть упродовж 60 років експлуатації.

В об'ємі матеріалу під час тривалої експлуатації утворюються ділянки з підвищеним розпуханням. При цьому слід зазначити, що за рівня розпухання понад 10 % сталь X18H10T починає окрихчуватися [10]. Так, після 30 років експлуатації спостерігатиметься одна зона з максимальним розпуханням ~11 % (рис. 3а). Через 10 років вона розшириться, а максимум розпухання досягне ~17 % (рис. 3б). Подовження роботи реактора до 50 років може спричинити появу ще однієї небезпечної ділянки розпухання, а максимальне розпухання вигородки в зоні 1 становитиме ~23 % (рис. 3в), що може призвести до падіння пластичності матеріалу [10, 11]. Після 60 років експлуатації кількість небезпечних ділянок зростає до трьох, при цьому в зоні 1 розпухання сягне ~30 % (рис. 3г). Наявність похибки експериментальних даних зумовлює похибку параметрів емпіричної функції, а це означає, наприклад, що через 60 років експлуатації вигородки розрахований максимум розпухання перебуватиме в межах від 20 до 40 %.

Цей прогноз розпухання вигородки реактора ВВЕР-1000 не враховує впливу напруг, га-

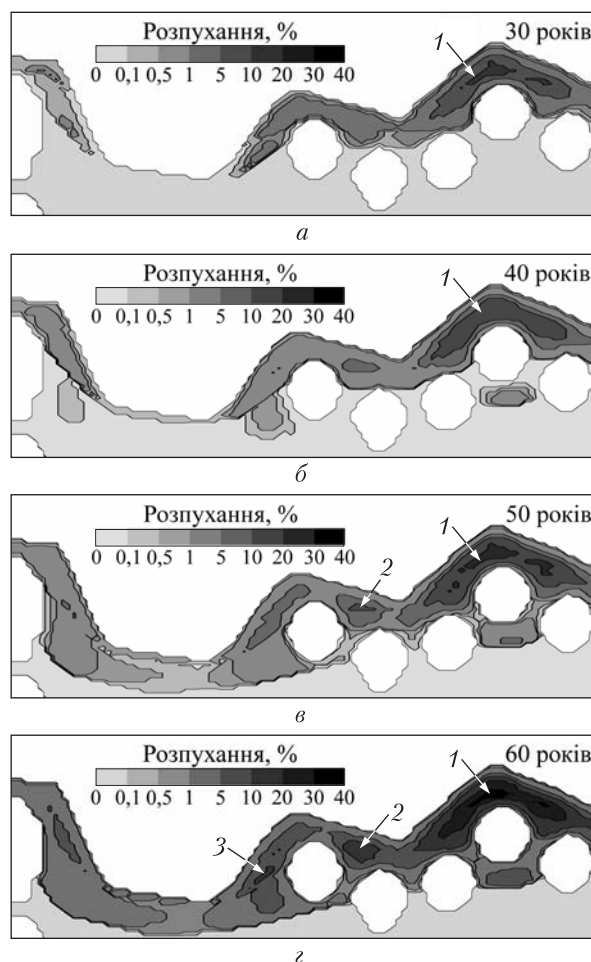


Рис. 3. Розраховані поля розпухання в поперечному перерізі вигородки реактора ВВЕР-1000 після: а – 30, б – 40, в – 50, г – 60 років експлуатації; 1, 2, 3 – зони, де розпухання перевищує 10 %

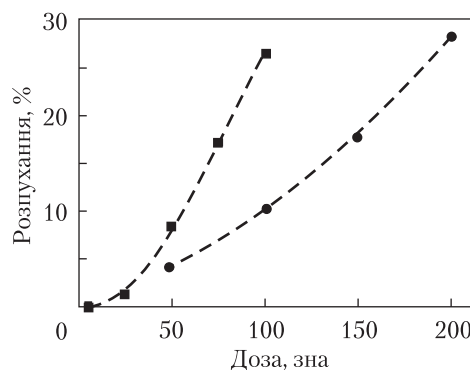


Рис. 4. Дозні залежності розпухання сталей: ● – 08X18H10T ДЗО, $T = 650$ °С (квадратична апроксимація); ■ – 08X18H10T, $T = 615$ °С

зових домішок, радіаційної повзучості. Деякі з цих факторів підсилюватимуть розпухання, а деякі — навпаки, пригнічуватимуть. Проте навіть радіаційна повзучість, яка приводить до зменшення градієнтів напруг, зі збільшенням часу експлуатації (понад 17 років) знижує свій релаксаційний вплив [9]. Отже, виявлені в тенденції в поведінці розпухання вигородки реактора ВВЕР-1000 збережуться (докладніше див. [12, 13]).

Розпухання дисперсно-зміцненої оксидами ітрію сталі 08X18H10T. З наведеного прогнозу розпухання вигородки реактора ВВЕР-1000 можна бачити, що сталь 08X18H10T здебільшого не здатна гарантувати безпечну роботу матеріалу після 60 років експлуатації. Цілком природно виникає потреба в розробленні нових перспективних конструкційних матеріалів ядерних реакторів.

Одним із нових способів підвищення радіаційної стійкості комерційних сталей є створення матеріалів, легованих дрібнодисперсними частинками оксидів. Очікується, що такі матеріали забезпечать підвищену жаростійкість, опір повзучості та розпухання [14–17].

Здійснене опромінення в інтервалі доз (50–200 зна) й температур (500–700 °C) за швидкості створення зміщень 10^{-2} зна/с показало, що, на відміну від сталі 08X18H10T, сталь, дисперсно-зміцнена оксидами ітрію (08X18H10T ДЗО), мала вищу концентрацію, але менший розмір пор. Слід зазначити, що сталь 08X18H10T ДЗО має ширший інтервал пороутворення порівняно з її основою. Однак, побудувавши дозні залежності розпухання (рис. 4), можна бачити, що за температури максимального розпухання ДЗО-сталь має вищий опір розпухання, ніж сталь 08X18H10T. Так, при дозі 100 зна розпухання ДЗО-сталі в 2,5 раза нижче порівняно зі сталлю 08X18H10T, що свідчить про позитивну роль оксидних частинок у посилен-

ні рекомбінації полярних точкових дефектів у процесі опромінення. Детальніше результати цих досліджень наведено в роботі [4].

Висновки

Проведено аналіз і узагальнення закономірностей впливу різних експлуатаційних факторів на розпухання та мікроструктуру сталей аустенітного класу — основних матеріалів внутрішньокорпусних пристроїв реакторів на теплових нейтронах.

Вивчено спільний вплив на розпухання водню й гелію за концентрацій, що відповідають 30 рокам експлуатації вигородки реактора ВВЕР.

На основі даних, отриманих на прискорювачі, та реакторних даних запропоновано емпіричну функцію для розрахунку розпухання сталі 08X18H10T в широкому інтервалі доз, температур опромінення та швидкостей створення зміщень, яку можна використовувати для прогнозу розпухання до великих доз.

Уперше із застосуванням розробленої емпіричної моделі здійснено прогноз роботоздатності вигородки реактора ВВЕР-1000 під час тривалої експлуатації.

Досліджено розпухання перспективної сталі 08X18H10T, дисперсно-зміцненої оксидами ітрію. Показано, що в температурних максимумах стійкість до радіаційного розпухання сталі 08X18H10T ДЗО вища порівняно зі сталлю 08X18H10T.

Допвідач висловлює велику подяку всім співавторам робіт, на основі яких зроблено це повідомлення, особливо О.В. Бородіну, В.В. Брику, В.М. Воєводіну, Н.П. Лазареву, В.В. Мельниченку (ННЦ ХФТІ НАН України). Окрема вдячність В.С. Агєєву і А.А. Нікітіній із Всеросійського НДІ неорганічних матеріалів ім. А.А. Бочвара (Москва) за надання зразків сталі 08X18H10T ДЗО.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Garner F.A., Simonen E.P., Oliver B.M. et.al. Retention of hydrogen fcc metals irradiated at temperatures leading to high densities of bubbles or void // J. Nucl. Mater. — 2006. — V. 356. — P. 122–135.
2. Edwards D.J., Garner F.A., Bruemmer S.M., Efsing P. Nano-cavities observed in a 316SS PWR flux thimble tube irradiated to 33 and 70 dpa // J. Nucl. Mater. — 2009. — V. 384. — P. 249–255.

3. *Garner F.A., Greenwood L.R., Harvod D.L.* Potential high fluence response of pressure vessel internals constructed from austenitic stainless steels // *Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors: Proc. 6th Int. Symp.* – Sun Diego: TMS, 1993. – P. 783–790.
4. *Брык В.В., Воеводин В.Н., Кальченко А.С. и др.* Распухание дисперсно-упрочненной оксидами иттрия стали 0X18H10T, облученной тяжелыми ионами // *ВАНТ. Сер. ФРП и РМ.* – 2013. – Вып. 2(84). – С. 23–30.
5. *Tanaka T., Oka K., Ohnuki S. et al.* Synergistic effect of helium and hydrogen for defect evolution under multi-ion irradiation of Fe-Cr ferritic alloys // *J. Nucl. Mater.* – 2004. – V. 329–333. – P. 294–298.
6. *Borodin O.V., Bryk V.V., Kalchenko A.S. et al.* Synergistic effects of helium and hydrogen on self-ion-induced swelling of austenitic 18Cr10NiTi stainless steel // *J. Nucl. Mater.* – 2013. – V. 442. – P. S817–S820.
7. *Voyevodin V., Borodin O., Bryk V. et al.* Degradation Mechanisms of Pressure Vessel Internal Steel (18Cr-10Ni-Ti) Irradiated with Heavy Ions // *Mater. Sci. Forum.* – 2007. – V. 561–565. – P. 1725–1728.
8. *Kalchenko A.S., Bryk V.V., Lazarev N.P. et al.* Prediction of swelling of 18Cr10NiTi austenitic steel over a wide range of displacement rates // *J. Nucl. Mater.* – 2010. – V. 399. – P. 114–121.
9. *Троянов В.М., Лихачев Ю.И., Хмелевский М.Я. и др.* Оценка и анализ термомеханического поведения элементов ВКУ реакторов ВВЭР с учетом эффектов облучения // *Сб. докл. 5-й межотрасл. конф. по реакторному материаловедению (8–12 сентября 1997, Димитровград).* – Т. 2, Ч. 1. – С. 3–18.
10. *Неустров В.С., Голованов В.Н., Шамардин В.К.* Радиационное охрупчивание материалов ТВС в температурном интервале максимума распухания // *Атомная энергия.* – 1990. – Т. 69, № 4. – С. 223–226.
11. *Garner F.A., Edwards D.J., Bruemmer S.M. et al.* Recent developments concerning potential void swelling of PWR internals constructed from austenitic stainless steels // *Contribution of Materials Investigation to the Resolution of Problems Encountered in PWR: 5th Int. Symp. (23–27 Sept. 2002, Fontevraud).*
12. *Кальченко А.С., Брык В.В., Воеводин В.Н., Лазарев Н.П.* Прогнозирование радиационного распухания выгородки реактора ВВЭР-1000 на период эксплуатации 30–60 лет // *Атомна енергетика. Ядерна фізика та енергетика.* – 2011. – Т. 12, № 1. – С. 69–78.
13. *Kalchenko A.S., Bryk V.V., Lazarev N.P. et al.* Prediction of void swelling in the baffle ring of WWER-1000 reactors for service life of 30–60 years // *J. Nucl. Mater.* – 2013. – V. 437. – P. 415–423.
14. *Воеводин В.Н., Неклюдов И.М.* Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов. – К.: Наук. думка, 2006. – 376 с.
15. *Liu C., Yu C., Hashimoto N. et al.* Micro-structure and micro-hardness of ODS steels after ion irradiation // *J. Nucl. Mater.* – 2011. – V. 417. – P. 270–273.
16. *Ramar A., Baluc N., Schaublin R.* On the lattice coherency of oxide particles dispersed in EUROFER97 // *J. Nucl. Mater.* – 2009. – V. 386–388. – P. 515–519.
17. *Yamashita S., Akasaka N., Ukai S., Ohnuki S.* Microstructural development of a heavily neutron-irradiated ODS ferritic steel (MA957) at elevated temperature // *J. Nucl. Mater.* – 2007. – V. 367–370. – P. 202–207.

А.С. Кальченко

Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»
Национальной академии наук Украины
ул. Академическая, 1, Харьков, 61108, Украина

РАДИАЦИОННОЕ РАСПУХАНИЕ МАТЕРИАЛОВ ВНУТРИКОПУСНЫХ УСТРОЙСТВ РЕАКТОРОВ ВВЭР

Методом экспрессного облучения на ускорителе получены систематические данные по распуханию стали 08X18H10T – материала внутрикорпусных устройств реакторов ВВЭР – при различных условиях облучения (дозах, температурах, скоростях создания смещений, концентрациях гелия и водорода). Установлены особенности влияния гелия и водорода на процессы распухания при изменении температуры облучения. Построена функция, описывающая распухание исследуемой стали в широком интервале доз, температур и скоростей создания смещений, характерных как для реакторных условий, так и для облучений на ионных ускорителях. Выполнен прогноз распухания стали 08X18H10T по сечению выгородки реактора ВВЭР-1000 в процессе длительной эксплуатации (30–60 лет). Исследовано распухание перспективной стали 08X18H10T, дисперсно-упрочненной

оксидами, облученной на ускорителе. Установлено, что ее стойкость к радиационному распуханию выше по сравнению со сталью 08X18H10T.

Ключевые слова: реакторы ВВЭР, сталь 08X18H10T, дисперсно-упрочненная оксидами сталь, облучение, радиационное распухание, гелий и водород.

A.S. Kalchenko

National Science Center «Kharkov Institute of Physics and Technology»
of the National Academy of Sciences of Ukraine
1 Akademicheskaya St., Kharkov, 61108, Ukraine

RADIATION SWELLING OF MATERIALS PRESSURE VESSEL INTERNALS OF WWER REACTORS

The systematic data on swelling of 08Cr18Ni10Ti steel – material of pressure vessel internals of WWER reactors – under different irradiation parameters (dose, temperature, dose rate, concentration of hydrogen and helium) are obtained by the method of simulation by accelerator. The features in the effect of helium and hydrogen on the processes of swelling versus irradiation temperature variation are established. A function which describes the swelling of the investigated steel in a wide range of doses, temperatures and dose rates is plotted both for reactor conditions as for irradiations in ion accelerators. Prediction of 08Cr18Ni10Ti steel swelling behaviour over a cross-section of the baffle ring of a WWER-1000 reactor during long-term operation 30–60 years is made. Swelling of oxide dispersion strengthened (ODS) 08Cr18Ni10Ti promising steel was investigated after the irradiation in accelerator. It was determined that swelling resistance of ODS 08Cr18Ni10Ti steel is higher than that of 08Cr18Ni10Ti steel.

Keywords: WWER reactors, 08Cr18Ni10Ti steel, oxide dispersion strengthened steel, irradiation, radiation swelling, helium and hydrogen.