

A reaktortartály acélszerkezetének ridegdedése

Lehofer Kornél

Kulcsszavak: reaktortartály acélok, kiválásos keményedés, VVER reaktor acélok, neutron fluens, ridegdedés
Keywords: reactor steels, precipitation hardening, WWER reactor steels, neutron fluence, embrittlement

Summary

Embrittlement of the reactor vessel steels.

Irradiation embrittlement of the precipitation hardened ferritic reactor structure steels is summarised and appreciated on the basis of published data. It is pointed to the different fundamentally causes of the temperature depending embrittlement process induced by fast neutron fluence. Namely, at the low irradiation temperatures ($< 300\text{ }^{\circ}\text{C}$) the Charpy's transient temperature shift decreases exponential with the yield point of steels measured at $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ before irradiation because the annihilation of point defects induced by fast neutron fluence depends fundamentally on the inter particles spacing (Fig. 1 and 2) and the quantity of C, O and mainly N atoms being interstitial solid solution in ferrite. But than now at the service temperature of the WWER reactors the main structural changing effects of the embrittlement are density and size of radiation-induced precipitation of the Ni and mainly the Cu, and the segregation of the P to the interfaces. These are supported by the IAEA TECDOC-1442, May 2005 guideline concerning to the WWER reactor steels recommended to determine the Charpy's transient temperature shift by Eq. (1) controlled with the measured data (Fig. 3).

Bevezetés

Az IAEA SAFELIFE programja kiemelten a VVER 440 és 1000 típusú reaktorok szerkezeti acéljainak, elsősorban a neutronsugárzás okozta, hőmérsékletfüggő anyagszerkezet-változás miatt szívósságsökkenéssel és a rideg-képlékeny törés átmeneti hőmérséklete pozitív irányú eltolódásának összetett folyamatával foglalkozott. A reaktorok szerkezeti acéljai ferrites matrixúak, átlagosan 0,2 m% széntartalmúak és Cr-, Mo- és V-mal, esetenként Ni-lel gyengén ötvözöttek. A kovácsolt elemekből körvarratokkal összehegesztett tartályt úgy hőkezelték, hogy acélszerkezetük inkoherens karbidkiválásokkal keményített ferrites szövetszerkezetű legyen.

Számos vizsgálat igazolja, hogy a neutron-sugárzásnak a fémek szerkezetére és ezen keresztül tulajdonságaira gyakorolt hatása függ egyrészt az anyag összetételétől, szerkezetétől és szövetszerkezetétől, másrészt a neutronsugárzás intenzitásától, energiaspektrumától, a besugárzás időtartamától, vagyis összegezve: a neutron/cm²-ben kifejezett spektrális neutron dózistól (az ún. fluenstől), továbbá

függ a besugárzás hőmérsékletétől, de független a dózisteljesítménytől. Közbevetve megjegyezzük, hogy a reaktortartályok szerkezeti acéljait, a tervezett élettartamuk alatt, $10^{19} - 10^{20}$ neutron/cm² fluens éri.

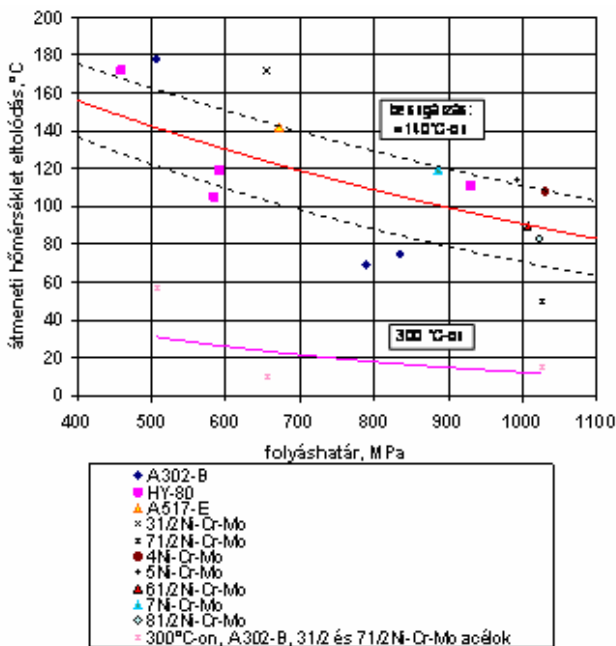
Anyagszerkezet- és tulajdonság-változás

A tulajdonság-változás anyagszerkezeti okainak lényege a következő: A fémekbe csapódó, nagy energiájú ($E > 1\text{ MeV}$), ún. gyors neutronok hatására – a termikus egyensúlyihoz képest – megnő a rácshibák mennyisége, elsősorban az üres rács helyek (vakanciák) és a rácsból interstíciós helyzetbe kilökött atomok száma, amelyekből, diffúzió útján, különböző méretű felhalmozódások keletkeznek, illetve ezek a besugárzás előtt már meglévő rácshibákkal – főleg a diszlokációkkal –, az interstíciósan és szubsztitúciósan oldott ötvöző- és szennyezőelemekkel kölcsönhatásba lépnek. Ennek eredményeként változnak meg a fém mechanikai tulajdonságai.

A változás mértékét jelentősen befolyásolja a besugárzás hőmérséklete, lévén, hogy az ezt okozó anyagszerkezet-változások exponenciálisan hőmérsékletfüggők. Ez okból, adott besugárzási hőmérsékleten, a mechanikai tulajdonság-változás mértéke alapvetően függ a neutronsugárzás hatására képződő és részben a nyelőként működő inkoherens határfelületeken (a szemcse- és a matrix-kiválás határon) megsemmisülő ponthibák dinamikus egyensúlyának a termikusától eltérő, magasabb szintjétől. Ezt a szintet viszont a nyelők átlagos távolsága határozza meg, mivel a ponthibák diffúziós sebessége a besugárzási hőmérséklettel adott. Az inkoherens kiválásokkal keményített matrixú fémötvözetekben (ilyenek a reaktorok ferrites acélszerkezetű acéljai is) a kiválások átlagos távolsága a besugárzás előtt $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ -on mért $R_{p0,2/20}$ folyáshatárúkkal jellemezhető, így az inkoherens kiválásokkal keményített, de a minőségre és rácsszerkezetre azonos matrixú (pl. ferrites) ötvözetek neutronsugárzás okozta mechanikai tulajdonság-változására rendelkezésünkre álló kísérleti adatok együttesen értékelhetők folyáshatárú függvényében, [Lehofer, 1978]. Ezt szemlélteti az 1. ábra, amelyen 10 különböző összetételű, csillapított, 0,12–0,20 m% C-tartalmú, zömmel Ni-Cr-Mo-ötvözetű (3–8,5 m% Ni) és korlátozott szennyezőtartalmú ($P \leq 0,01$, $Cu \leq 0,1$ m%), és a reaktortartályoknál is szóba jöhetően hőkezelt, 25–200 mm vastag lemezekből kimunkált, Charpy-V-bemetszésű próbatestek útve hajlítóvizsgálatával elért eredményeket mutatjuk be, feldolgozva a

[Hawthorne–Steele, 1967, és Steele–Hawthorne–Gray, 1967] közleményekben foglaltakat. Az ábrán a 140 °C-nál kisebb, illetve 300°C-on, 2.10^{19} n/cm² (>1 MeV) fluenssel besugárzott acélok 41 J (30 ft.lb) energiához tartozó ΔT_{41} átmeneti hőmérséklet-növekedését ábrázoltuk a besugárzás előtt, 20 °C-on mért $R_{p0,2/20}$ folyáshatáruk függvényében. Látható, hogy a folyáshatár növekedésével – a kiválások térfogathányadának növekedésével, illetve átlagos távolságuk, azaz a diffúziós út csökkenésével – az acélok pozitív irányú átmeneti hőmérséklet-növekedésének mértéke exponenciálisan csökken. A tapasztalt ± 20 °C-os teljes szórási sáv összhangban van az átmeneti hőmérséklet-növekedés meghatározási pontosságával.

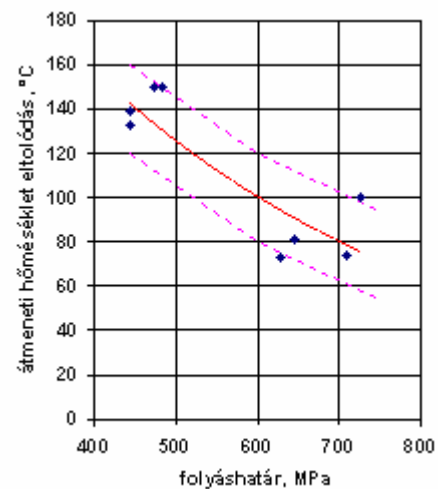
A 2. ábra – bár ugyancsak az előbbi összefüggést szemlélteti, de a 140 °C-nál kisebb hőmérsékleten, $3.2.10^{19}$ n/cm² (>1 MeV) fluenssel besugárzott acélra – azért tanulságos, mert a szerzők [Hawthorne–Steele, 1967] a nagyon gondosan gyártott, ASTM A 302–B minőségjelű, 0,20 m% C-, 1,3 m% Mn-, 0,5 m% Mo-tartalmú, gyengén ötvözött acél kiválásokan keményített állapotban vizsgálták, de az inkoherens karbidok átlagos távolságát, és ezzel az acél folyáshatárát is, hőkezeléssel változtatták. A gondos gyártás azt jelenti, hogy az acél gyakorlatilag szennyezőktől mentes volt ($P \leq 0,005$; $S \leq 0,005$; $Ni \leq 0,05$; $Cr \leq 0,05$; $Cu \leq 0,01$; $Ti \leq 0,005$; $Sn \leq 0,005$; $N \leq 0,004$ m%).



1. ábra. Kiválásokan keményített ferrites acélok 2.10^{19} n/cm² (>1 MeV) fluens okozta átmeneti hőmérséklet növekedése a besugárzás előtt 20 °C-on mért folyáshatárjuk függvényében. (A [Hawthorne–Steele, 1967, és Steele–Hawthorne–Gray, 1967] adatainak feldolgozása.)

Fig. 1: Transient temperature shift of the ferritic steels caused by 2.10^{19} n/cm² (>1 MeV) fluence vs. yield strength measured at 20 °C before irradiation. (Data processing of [Hawthorne–Steele, 1967, és Steele–Hawthorne–Gray, 1967]).

Elemezve kísérleteik eredményeit, az is megállapítható volt egyértelműen [Lehofer, 1978], hogy a ferrites acélok neutronsugárzás okozta mechanikai tulajdonság-változásában – a 300°C-nál kisebb besugárzási hőmérsékleteken – jelentős szerepe van a ferritben interstíciósan oldott N, O és C atomok felhalmozódásának a diszlokációk extrasíkjai környezetében, illetve az atom–vakancia párok képződésének. Különösen a N hatása jelentős. Ezeknek a 1–2 nm méretű képződményeknek a diszlokációk mozgá-



2. ábra. A kiválásokan keményített A 302-B jelű ferrites acélok $3.2.10^{19}$ n/cm² (>1 MeV) fluens okozta átmeneti hőmérséklet növekedése a besugárzás előtt 20 °C-on mért folyáshatárjuk függvényében. (A [Hawthorne–Steele, 1967] adatainak feldolgozása.)

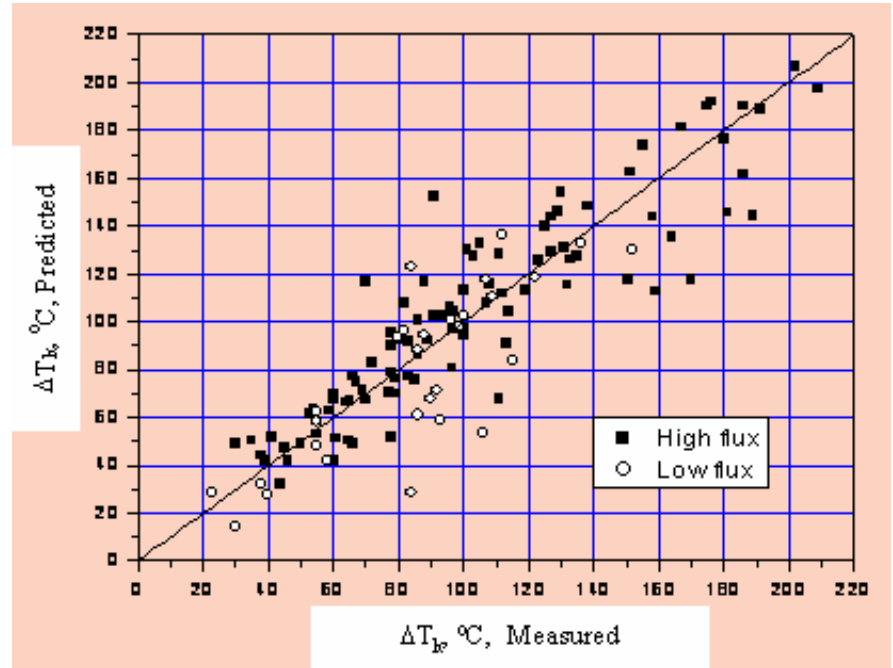
Fig. 2: Transient temperature shift of the A 302-B ferritic steels caused by $3.2.10^{19}$ n/cm² (>1 MeV) fluence vs. yield strength measured at 20 °C before irradiation. (Data processing of [Hawthorne–Steele, 1967]).

sát gátló, ridegítő hatása a besugárzási (reaktoroknál az üzemi) hőmérséklet növekedésével részben a növekedő mozgékonyáguk révén bekövetkező egyesülésük, részben rekombinációjuk miatt jelentősen csökken. Kitűnik ez az 1. ábrából is világosan.

Viszont, a besugárzási hőmérséklet növekedésével megnő – sőt a VVER reaktorok üzemi hőmérsékletén is már uralkodóvá válik – a ferritben szubsztitúciósan oldott elemekben, például Ni-ben, de különösen Cu-ben dús fázisnak az önálló, igen finom (1–2 nm sugarú), koherens, korong alakú kiválása (ezek száma cm³-ként elérheti a 2.10^{19} értéket is), gátolva a diszlokációk mozgását; továbbá egyes szennyezők, különösen a P dúsulása a kristályok és az inkoherens matrix-kiválások határfelületein, elő-

segítve a rideg törést [Gurovich at al., 1997]. Vagyis ezek hatására nő az acél szilárdsága, de csökken a szívóssága és nő, a Charpy-féle ütve hajlítóvizsgálattal meghatározható rideg – képlékeny átmeneti hőmérsékletének pozitív irányú eltolódása. Ám ezeknek az anyagszerkezetváltozásoknak a hatása már nem írható le az acél besugárzása előtti állapotában 20°C-on mért folyáshatárával, mivel ez nem minősítheti a hosszabb besugárzási idő folyamán kialakuló, a diszlokációs mozgást akadályozó, igen finom és koherens kiválásokat. [Bár az 1. ábra szerinti, a 300 °C-on végzett $2 \cdot 10^{19}$ n/cm² (> 1 MeV) fluenssel besugárzott acélokra érvényes összefüggés alapján a VVER 440 reaktorok acélanyagaira az első indításukkor jellemző, $R_{p0,2/20} = 550\text{--}600$ MPa folyáshatárral számolva az átmeneti hőmérséklet pozitív irányú eltolódására, $\Delta T_{41} = 26\text{--}28$ °C adódik, ami jól egyezik a VVER 440 reaktorok anyagain ténylegesen mért és számolt értékkel (lásd az IAEA TECDOC-1442, May 2005 számú dokumentumból származó 3. ábrát)].

Ugyanakkor ma már igazolt tény az is, hogy a VVER típusú



3. ábra. Az üzemben lévő VVER 440 reaktortartály acélok számított és mért ridegedése.

Fig. 3: Guidelines for Prediction of Radiation Embrittlement of Operating WWER-440 RPVs,

reaktortartályok övzónájában a neutronsugárzás hatására elridegedett acél szívóssága, az övzóna helyben elvégezhető hőkezelésével, regenerálható, mégpedig az eredetihez közeli értékre, és így a reaktor-tartály élettartama a tervezetthez képest biztonságosan megnövelhető, [Trampus, 2004] A hőkezelés lényegében meg-eresztés, amelyet az üzemi hőmérsékletnél mintegy 200 °C-kal nagyobb hőmérsékleten, tartós (~100 órás) hőntartással, lassú (< 20 °C/h) felmelegítéssel és lehűtéssel végeznek el.

A VVER reaktorok acéljainak ridegedése

Visszatérve a VVER típusú reaktortartályok szerkezeti acéljainak neutronsugárzás okozta ridegedésével foglalkozó IAEA TECDOC-1442, May 2005 dokumentumra, megállapítható, hogy ennek az összetett jelenségnek a leírására napjainkban is még csak empirikus összefüggések ismertek. A dokumentum a reaktortartályok üzemi hőmérsékletén a gyors neutron fluensztől függő, egyidejűleg végbemenő, a diszlokációk mozgását akadályozó anyagszerkezetváltozás hatását három, lineárisan összegezhető tényezővel fejezi ki az (1) szerinti összefüggésben, amely leírja a ferrites, kiválásokon keményített

állapotban beépített szerkezeti acélok ridegedésére alapvető jellemző tulajdonságot, a Charpy-féle ütve hajlító vizsgálattal meghatározható átmeneti hőmérséklet pozitív irányú eltolódását, nevezetesen:

- (i) a matrix rácshiba-szerkezetének módosulását, az (1) összefüggés első tagja;
- (ii) a réz kiválását, rézben dús fázisként, igen finom, koherens, korong alakú részecskék formájában, az (1) összefüggés második tagja; és
- (iii) a foszfor dúsulását a határfelületeken, az (1) összefüggés harmadik tagja írja le.

$$\Delta T_{41} = a \cdot F^{0,5} + b_1 \cdot Cu \cdot [1 - \exp(-F / F_{sat})] + \frac{c_1 \cdot P}{2} \left[1 + th \left(\frac{F - F_{start}}{d} \right) \right] \quad (1)$$

Az összefüggésben az F az acélt ért gyors neutron fluens (n/cm^2), míg az a , b_1 , c_1 d , illetve az F_{sat} és az F_{start} a VVER reaktor acélokra jellemző illesztési állandók. Megjegyezzük, hogy az (1) egyenlet második tagja az acél Cu-tartalmával (m%), míg az egyenlet harmadik tagja az acél P-tartalmával (m%) szoros lineáris korrelációban van.

Az ajánlott összefüggéssel számított és az ilyen reaktortartály típussal üzemelő atomerőművek vagy háttér intézményei laboratóriumaiban a Charpy-féle ütve hajlító vizsgálattal meghatározott átmeneti hőmérséklet pozitív irányú eltolódására vonatkozó adatok elfogadhatóan jó egyezését szemlélteti a 3. ábrán látható összesítő diagram. A diagramban feltüntetett adatok olyan VVER reaktor acélokra jellemzőek, amelyeket üzemidejük során $(3,5-60) \cdot 10^{19}$ n/cm^2 gyors neutron fluens hatás ért.

Hivatkozások

- Gurovich, B. A., Kuleshova, E. A., Nikolaev, Yu. A., Shtrombakh, Ya. I. (1997): Assessment of relative contributions from different mechanisms to radiation embrittlement of reactor pressure vessel steels. *Journal of Nuclear Materials*, **246** pp. 91-120
- Hawthorne, J. R., Steele, L. E. (1967): Metallurgical variables as possible factors controlling irradiation response of structural steels. *ASTM STP 426*, pp. 534-591.
- IAEA TECDOC-1442, May 2005: Guidelines for Prediction of Radiation Embrittlement of Operating WWER-440 RPVs,
- Lehofer, K., Sipos, T. (1978): Neutronsugárzásnak kitett szerkezeti anyagok minősítő és ellenőrző fémtani vizsgálatainak sajátosságai, *Gép*, **XXX.**, 1., pp.6-12.
- Steele, L. E., Hawthorne, J. R., Gray, R. A. (1967): Neutron irradiation embrittlement of several higher strength steels. *ASTM STP 426*, pp. 346-370.
- Trampus, P. (2004): Reaktortartály acél sugárkárosodása és a károsodás csökkentése. *Anyagvizsgálók Lapja*, **14.**, 3., pp. 88-95.