

文章编号 : 0258-0926(2017)S1-0125-04 ; doi: 10.13832/j.jnpe.2017.S1.0125

反应堆压力容器材料中子辐照脆化研究

孙 凯, 冯明全, 李国云, 吴亚贞, 李福荣

中国核动力研究设计院, 成都, 610213

摘要 : 将国产反应堆压力容器 (RPV) 材料夏比冲击试样及 0.5T-CT 试样置于高通量工程试验堆中进行中子辐照考验, 快中子 ($E > 1$ MeV) 注量为 $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ 。由辐照前后夏比冲击试验得到材料的参考零塑性温度的变化量 ΔRT_{NDT} 为 48 , 由辐照前后转变温度区的断裂韧性试验得到材料的参考温度 ΔT_0 为 53 , 辐照脆化效应比较明显。采用由断裂力学方法得到的 RT_{T0} 代替 RT_{NDT} 作为表征材料辐照脆化的参数应用于 RPV 完整性评估, 可以进一步挖掘 RPV 的安全裕量, 提高核电厂的经济性。

关键词 : RPV 材料; 辐照脆化; ΔRT_{NDT} ; ΔT_0

中图分类号 : TL292 文献标志码 : A

Assessment of Irradiation Embrittlement of Domestic RPV Material

Sun Kai, Feng Mingquan, Li Guoyun, Wu Yazhen, Li Furong

Nuclear Power Institute of China, Chengdu, 610213, China

Abstract : The Charpy impact specimen and 0.5T-CT specimen extracted from a certain domestic RPV material are irradiated in HFETR with fast neutron ($E > 1$ MeV) influence of $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$. In accordance with unirradiated and irradiated Charpy impact test, the measured ΔRT_{NDT} is 48 , while, according to the fracture toughness test in ductile-brittle transition region, the measured ΔT_0 is 53 , these actual measurement results demonstrate that the irradiation embrittlement effect is obvious. The RT_{T0} based on the fracture mechanics methodology to be an alternative indexing to RT_{NDT} could further exploit the underlying safety margin of RPV and improve the economy of NPP.

Key words : RPV material, Irradiation embrittlement, ΔRT_{NDT} , ΔT_0

0 引 言

反应堆压力容器 (RPV) 是压水堆核电厂最为关键的设备之一, 使链式反应限制在一个密闭的空间内, 其长期在高温、高压、强辐照环境下运行, 是核电厂全寿期内不可更换的大型设备, 因此其结构完整性直接关系到反应堆的运行安全性能。在核电厂运行期间, RPV 的性能会由于多重原因而下降, 其中快中子辐照脆化是最重要的因素。辐照脆化会导致 RPV 材料的韧脆转变温度上升, 可能诱发脆性破坏, 造成灾难性的后果。当前国产 RPV 材料商用堆、工程试验堆的辐照后

力学性能数据均极度缺乏, 有必要开展国产 RPV 材料的辐照后力学性能评价研究。本文对国产 RPV 材料进行了加速辐照考验、力学性能试验及辐照脆化评估, 为国产化 RPV 材料的辐照效应研究提供参考。

1 RPV 材料辐照脆化评估方法

1972 年, 美国机械工程师协会 (ASME) B & P Code 第 III 卷 NB2300 收录了参考零塑性温度 RT_{NDT} 的相关概念及测试方法^[1], 它被定义为材料在转变温度区的特征转变温度, 作为反应堆启堆、

停堆、瞬态工况下的输入参数。 RT_{NDT} 由落锤及夏比冲击试验获得,但由于落锤试样尺寸较大,不利于辐照后数据的获得,因此实际测试中辐照后 RPV 材料 RT_{NDT} 的变化量 ΔRT_{NDT} 一般由辐照前后特定冲击能量转变温度的变化量确定,这一特定的冲击能量一般为 41 J 或 56 J,本文均以 41 J 为参考,实测 ΔRT_{NDT} 见式 (1):

$$\Delta RT_{\text{NDT}} = \Delta T_{41\text{J}} = T_{41\text{J}(\text{辐照后})} - T_{41\text{J}(\text{辐照前})} \quad (1)$$

式中, $\Delta T_{41\text{J}}$ 为辐照前后 41 J 冲击能量特征转变温度的差值; $T_{41\text{J}(\text{辐照后})}$ 为辐照后 RPV 材料 41 J 冲击能量所对应的特征转变温度; $T_{41\text{J}(\text{辐照前})}$ 为未辐照 RPV 材料 41 J 冲击能量所对应的特征转变温度。

上世纪 80 年代, Kim Wallin 提出了 Master Curve 理论,其关键参数为参考温度 T_0 , T_0 被定义为 1 英寸厚试样在断裂韧度为 $100 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 时所对应的温度^[2],可以认为参考温度 T_0 为材料断裂韧性的转变温度,这一概念与 $T_{41\text{J}}$ 为 41 J 冲击能量所对应的特征转变温度类似。采用参考温度 T_0 可按式 (2) 评价 RPV 材料的辐照脆化效应:

$$\Delta T_0 = T_{0(\text{辐照后})} - T_{0(\text{辐照前})} \quad (2)$$

式中, ΔT_0 为中子辐照导致 T_0 产生的变化量; $T_{0(\text{辐照后})}$ 为辐照后 RPV 材料的 T_0 ; $T_{0(\text{辐照前})}$ 为未辐照 RPV 材料的 T_0 。

由于可以采用少量相对较小的试样直接实测辐照后 RPV 材料的参考温度 T_0 ,所以参考温度 T_0 相比参考零塑性温度 RT_{NDT} 更能准确反映 RPV 材料的韧脆转变温度。

目前俄罗斯、芬兰、捷克、美国、法国等已经探索采用 T_0 的变化量来衡量商用核电厂 RPV 材料的辐照脆化程度,如法国在 2004 年以前就完成了 250 多个 0.5T-CT 辐照监督试样,其测试指标为参考温度 T_0 ^[3]。从数值方面来看, $\Delta T_{41\text{J}}$ 与 ΔT_0 存在一定的经验关联,有研究表明对于 RPV 母材, $\Delta T_{41\text{J}} : \Delta T_0 = 1:1.16$, 标准差 $\sigma = 18$; 而 T_0 与 $T_{41\text{J}}$ 之间也存在经验公式: $T_0 = T_{41\text{J}} - 24$, $\sigma = 20$ ^[4]。

Master Curve 方法的长期目标是代替现有的 KIC、KIR 曲线进行 RPV 完整性评估,但由于历史原因,目前大部分在役压水堆的 RPV 均未能测得 T_0 ,但均保存有 RT_{NDT} 数据^[5],故而 ASME B & P Code 保留了原有的以 RT_{NDT} 为参量的 KIC 曲

线和 KIR 曲线,但提出可以采用 RT_{T_0} 替代 KIC、KIR 曲线的标记参量 RT_{NDT} 。ASME B & P Code 提出可由 RT_{T_0} 代替 RT_{NDT} ,并且有如式 (3) 的关系式^[6-7]。一般来说, RT_{T_0} 的数值相比 RT_{NDT} 更低一些,所以可以有效挖掘 RPV 固有的安全裕量。

$$RT_{T_0} = T_0 + 19.4 \quad (3)$$

除了采用实测方法进行辐照脆化评估以外,多年来通过对实测数据的总结与归纳,已发展出多个理论模型用于预测 RT_{NDT} 随快中子注量增加的变化量,其中应用比较广泛的有美国核管会 (NRC) RG1.99 第二版中所给出的预测公式和法国 Framatome 公司给出的 FIS 公式,这些理论预测模型的主要目的是预测和评价。

RG1.99 第二版^[8]中 ΔRT_{NDT} 的预测公式为:

$$\Delta RT_{\text{NDT}} = [\text{CF}] f^{0.28-0.11\log f} \quad (4)$$

式中, [CF] 是化学成分因子,其数值可以根据材料中 Cu 和 Ni 的百分含量从 RG1.99 中的数据表查得; f 为中子注量因子。

FIS 公式是 Framatome 公司利用核电厂辐照监督数据的上包络带拟合出来的^[9],RPV 母材的预测为:

$$\Delta RT_{\text{NDT}} = 8 + [24 + 1537(C_p - 0.008) + 238(C_{\text{Cu}} - 0.08) + 191(C_{\text{Ni}}^2 C_{\text{Cu}})] f^{0.35} \quad (5)$$

式中, C_p 、 C_{Cu} 、 C_{Ni} 分别表示各元素的百分含量。当材料中 Cu、P 元素的百分含量分别低于 0.08% 和 0.008% 时,可认为 Cu、P 元素对材料的辐照脆化不产生影响。

2 试样及辐照试验

采用国产 RPV 材料锻件为原材料,在锻件内 1/4 厚度处分别加工夏比冲击试样及 0.5T-CT 试样,试样取样方向均为 T-L^[10]。夏比冲击试样采用 V 形缺口,0.5T-CT 试样宽度与厚度的比例关系 (W/B) 为 2,初始裂纹长度与宽度的比例关系 (a_0/W) 为 0.5。锻件化学成分见表 1,未辐照状态下的 RT_{NDT} 为 -30。

将未辐照的 18 个夏比冲击试样及 8 个 0.5T-CT 试样作为冷态对比试样,同时将 18 个夏比冲击试样及 8 个 0.5T-CT 试样装载入同一辐照装置,在高通量工程试验堆内进行中子辐照考验,通过高纯金属 Fe、Ni 等进行中子测量,采用热电

偶实现辐照温度的在线测量。辐照温度为 289 ± 15 ，快中子 ($E > 1 \text{ MeV}$) 注量率为 $8.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ，累积快中子注量为 $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ ，大致相当于国内压水堆运行 20 a 的注量水平。

3 辐照脆化评估

采用 Zwick RKP450 示波冲击机按照 ASTM E23 在系列温度下进行了辐照前后的夏比冲击试验^[11]，获得各试验温度下的冲击能量等数据，采用双曲正切函数对不同温度下的冲击能量进行拟合，获得辐照前后的冲击能量-温度曲线。未辐照试样的 $T_{41J} = -58$ ，经过 $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ 快中子辐照后的 $T_{41J} = -10$ ，从而 $\Delta RT_{NDT} = \Delta T_{41J} = T_{41J}(\text{辐照后}) - T_{41J}(\text{辐照前}) = -10 - (-58) = 48$ 。

采用 MTS810.10 万能材料试验机按照 ASTM E1921 在 -95 和 -47 分别采用单温度法进行了未辐照及 $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ 快中子辐照 0.5T-CT 试样的 T_0 试验，实测断裂韧性数据见表 2，未辐照状态下材料的参考温度 T_0 为 -96 ，而 $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ 快中子辐照后的参考温度 T_0 为 -43 ，从而 $\Delta T_0 = T_{0(\text{辐照后})} - T_{0(\text{辐照前})} = -43 - (-96) = 53$ 。

cm^{-2} 快中子注量下 ΔT_{41J} 和 ΔT_0 的关系为： $\Delta T_{41J} : \Delta T_0 = 1:1.10$ ，与国际同类经验数据相符。

根据 RG1.99 中 ΔRT_{NDT} 的预测公式，0.02%Cu、0.76%Ni 对应的化学成分因子为 20 ， $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ 快中子注量的中子通量因子 $f^{0.28-0.11 \log f}$ 为 1.29 ，所以 $\Delta RT_{NDT} = [CF] f^{0.28-0.11 \log f} = 20 \times 1.29 = 25.8 = 14 = \Delta T_{41J}$ ，这一预测值远低于实测的 ΔT_{41J} 。一般认为 RG1.99 中的预测结果不保守，近些年来美国 NRC 也已经注意到其中的 ΔRT_{NDT} 预测公式不能包络相当比例的实测数据，并明确表示 RG1.99 第三版将充分考虑冶金、辐照温度、辐照时间等因素的影响，提高相应的预测值。

由 FIS 公式计算得到的 $\Delta RT_{NDT} = 46$ ，相比实测数据略低 2 ，表明材料存在比较明显的辐照脆化现象。FIS 公式是利用法国核电厂辐照监督数据的上包络带拟合出来的，但实际参与拟合的数据仍有个别预测数据低于实测数据 10 以上。

RG1.99 中的预测公式及 FIS 公式对 ΔRT_{NDT} 的预测主要基于材料化学成分及快中子注量水

表 1 锻件化学成分

Table 1 Forging Chemical Composition

化学元素	C	Si	Mn	Cr	Ni	V	S	P	Cu	Fe
质量分数/%	0.19	0.19	1.46	0.11	0.76	< 0.005	0.002	< 0.005	0.02	其余

表 2 断裂韧性试验数据

Table 2 Fracture Toughness Data

试样编号	试验温度/	$K_{Jc(CT)}/\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$	数据是否有效	快中子注量/ cm^{-2}	$T_0/$
A1	-95	90.49	是	0	-96
A2	-95	87.62	是	0	
A3	-95	95.43	是	0	
A4	-95	89.37	是	0	
A5	-95	139.29	是	0	
A6	-95	131.26	是	0	
A7	-95	84.81	是	0	
A8	-95	83.52	是	0	
B1	-47	85.03	是	3.0×10^{19}	-43
B2	-47	103.65	是	3.0×10^{19}	
B3	-47	66.21	是	3.0×10^{19}	
B4	-47	73.14	是	3.0×10^{19}	
B5	-47	114.31	是	3.0×10^{19}	
B6	-47	134.62	是	3.0×10^{19}	
B7	-47	92.82	是	3.0×10^{19}	
B8	-47	80.40	是	3.0×10^{19}	

注： $K_{Jc(CT)}$ 为断裂韧性

平,未考虑快中子注量率的影响,预测模型的原始数据基本来源于商用核电厂的辐照监督试验,其快中子注量率水平范围为 $3.0 \times 10^9 \sim 2.0 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ [12]。本文中材料的辐照考验装置为工程试验堆,加速辐照的快中子注量率达 $8.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,远高于商用核电厂的中子注量率水平,而中子注量率对辐照脆化的影响至今没有定论,从本次辐照试验的结果与预测模型数值的对比来看,快中子注量率的增大对辐照脆化存在一定的加速效应。值得注意的是,RG1.99 中的预测公式及 FIS 公式分别来源于美国及法国 RPV 材料的辐照数据,与国产 RPV 钢锻件存在一定的差异,而国产 RPV 材料至今无相应的辐照脆化预测公式。

该 RPV 材料初始 RT_{NDT} 为 -30, 经过 $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ 快中子辐照后 $\Delta RT_{\text{NDT}}=48$, RT_{NDT} 为 18; 根据 ASME Code Case N-629 和 N-631, 经过 $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ 快中子辐照后的 RT_{T0} 为 -24, 相比 RT_{NDT} 存在 42 的安全裕量。按照压水堆运行 60 a 堆芯筒体段 $9.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ 中子注量水平计算, $\Delta RT_{\text{NDT}}=65$, $RT_{\text{NDT}}=35$; 假设 60 a 寿期末 $\Delta T_0: \Delta T_{41J}$ 与运行 20 a 相同, $\Delta T_0: \Delta T_{41J}$ 仍为 1.1, 则 $\Delta T_0=72$, RT_{T0} 为 -5, RT_{T0} 相比 RT_{NDT} 仍存在 40 的安全裕量, 可以作为 RPV 延寿的有效依据。

4 结 论

(1) 国产 RPV 材料经过 $3.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ 快中子辐照后的 ΔRT_{NDT} 为 48, ΔT_0 为 53, 存在比较明显的辐照脆化效应。

(2) 采用 RT_{T0} 代替 RT_{NDT} 作为表征 RPV 材料韧脆转变特性的参数, 可获得更大的安全裕量。

参考文献:

- [1] ASME. ASME boiler & pressure vessel code [R]. New York, The American Society of Mechanical Engineers, 1995.
- [2] ASTM E1921. Standard test method for determination of reference temperature, T_0 , for ferritic steels in the transition range [S].
- [3] Guillaume Chas. Experimental program to monitor the irradiation induced embrittlement of the french reactor pressure vessel steels [J]. ASME Pressure Vessels & Piping Conference, 2004: 25-35.
- [4] IAEA. Integrity of reactor pressure vessels in nuclear power plants: assessment of irradiation embrittlement effects in reactor pressure vessel steels [R]. NP-T-3.11, Vienna: IAEA, 2009.
- [5] Server W L. Application of master curve fracture toughness methodology for ferritic steels [R]. TR-108390, California: EPRI, 1998.
- [6] ASME. Use of fracture toughness test data to establish reference temperature for pressure retaining materials [R]. ASME Boiler and Pressure Vessel Code, Section XI, Division 1, Code Case N-629, New York, The American Society of Mechanical Engineers, 1999.
- [7] ASME. Use of fracture toughness test data to establish reference temperature for pressure retaining materials other than bolting for class 1 vessels [R]. ASME Boiler and Pressure Vessel Code, Section III, Division 1, Code Case N-631, New York, The American Society of Mechanical Engineers, 1999.
- [8] NRC. Radiation Embrittlement of reactor vessel materials [R]. Regulatory Guide 1.99 Revision 2, Washington, DC: Office of Nuclear Regulatory Research, 1988.
- [9] RSEM. In-Service inspection rules for the mechanical components of pwr nuclear islands [S]. 1990.
- [10] ASTM E399. Standard test method for linear-elastic plane-strain fracture toughness K_{IC} of metallic materials [S].
- [11] ASTM E23. Standard test methods for notched bar impact testing of metallic materials [S].
- [12] ASTM E900. Standard guide for predicting radiation-induced transition temperature shift in reactor vessel materials [S].

(责任编辑: 孙 凯)